

Elektronenbeugungsmethoden zur Strukturanalyse epitaktischer Siliziumkarbidschichten

Dissertation

**zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)**

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Diplom-Physiker Aimo Winkelmann
geboren am 24. März 1973 in Waren

- | | |
|---------------|-------------------------|
| 1. Gutachter: | Prof. Dr. W. Richter |
| 2. Gutachter: | Prof. Dr. L. Schlapbach |
| 3. Gutachter: | Prof. Dr. T. Chassé |

Tag der letzten Rigorosumsprüfung:	26.05.2003
------------------------------------	------------

Tag der öffentlichen Verteidigung:	05.06.2003
------------------------------------	------------

Inhalt

1	Einleitung	1
2	Vorstellung der untersuchten Materialien	4
2.1	Siliziumkarbid SiC	4
2.1.1	Physikalische Eigenschaften und Anwendungen	4
2.1.2	Kristallstruktur und Polytypismus	5
2.1.3	Stapelfolgen an Oberflächen	7
2.1.4	Herstellung von Schichten aus SiC-Polytypen	8
2.2	Aluminiumnitrid AlN	8
2.2.1	Physikalische Eigenschaften und Anwendungen	8
2.2.2	Kristallstruktur	8
3	Experimentelle Methoden	9
3.1	X-ray Photoelectron Diffraction (XPD)	9
3.1.1	Experiment	9
3.1.2	Anwendungen der Photoelektronenbeugung	11
3.2	Elektronen-Channelling-Muster und Elektronenrückstreumuster	13
3.2.1	Experiment	13
3.2.2	Anwendungen	14
3.3	Zusätzliche Methoden	15
3.3.1	Low Energy Electron Diffraction (LEED)	15
3.3.2	Reflection High Energy Electron Diffraction (RHEED)	16
3.3.3	Rastertunnelmikroskopie (STM)	16
3.4	Bisherige Untersuchungen an SiC-Oberflächen	17
4	Theoretische Grundlagen und Simulationsmodelle	18
4.1	Elektronenbeugung im Festkörper - allgemeine Grundlagen	18
4.1.1	Elektronenstreuung am Atom	18
4.1.2	Modellierungsansätze für Festkörper	19
4.1.2.1	Kinematische Theorie	19
4.1.2.2	Mehrfachstreumodelle und das Reziprozitätsprinzip	20
4.1.3	Cluster-Mehrfachstreutheorie – allgemeiner Formalismus	21
4.1.4	Elektronenbeugung an periodischen Potentialen – Dynamische Theorie	24
4.1.4.1	Blochwellentheorie der Elektronenbeugung	24
4.1.4.2	Beschreibung von LEED	25

4.2	Das Cluster-Einfachstreumodell für die röntgenangeregte Photoelektronenbeugung . . .	26
4.2.1	Modell	26
4.2.2	Parameter	30
4.2.2.1	Inelastische mittlere freie Weglänge	30
4.2.2.2	Debye-Waller-Faktor	30
4.2.2.3	Winkelauflösung	31
4.2.2.4	Inneres Potential	31
4.2.2.5	Empirische Reduktion der Streuamplitude	31
4.3	Das Blochwellenmodell für Elektronenchannellingmuster	32
4.3.1	Anschauliche Interpretation	32
4.3.2	Beugung des einfallenden Strahls	33
4.3.3	Berechnung der Rückstreuung	34
4.3.3.1	Aufenthaltswahrscheinlichkeit und lokalisierte Streueignisse	34
4.3.3.2	Unabhängige Blochwellen und Forward-Backward-Approximation . .	35
4.3.4	Parameter	36
4.3.4.1	Elastische Streupotentiale	36
4.3.4.2	Debye-Waller-Faktor	36
4.3.4.3	Absorption	36
4.4	Kikuchi-Band-Modell der XPD	37
4.5	Methoden und Modelle - Grenzen und Gemeinsamkeiten	38
4.6	Zusammenfassung	40
5	Datenauswertung und Theorievergleich	42
5.1	Photoelektronenbeugung	42
5.1.1	Darstellung der Daten	42
5.1.1.1	Vollständige Beugungsmuster	42
5.1.1.2	Polarscans und Azimutscans	43
5.1.2	χ -Funktionen	43
5.1.3	R-Faktoren	45
5.2	Elektronenchannellingmuster und Rückstreumuster	46
6	Ergebnisse	47
6.1	Vorausgehende Untersuchungen	47
6.1.1	Tiefenempfindlichkeit	47
6.1.1.1	Mittlere Freie Weglänge der Photoelektronen	48
6.1.1.2	Mehrfachstreurechnungen für charakteristische Atomketten	49
6.1.2	Anwendbarkeit des Einfachstreumodells	51

6.2	Polytypen und Polaritäten	52
6.2.1	Polaritätsbestimmung	52
6.2.1.1	Polaritätsbestimmung mit XPD	52
6.2.1.2	Polaritätsbestimmung mit ECP	54
6.2.1.3	Polaritätsbestimmung mit LEED und RHEED	55
6.2.2	Polytypbestimmung	56
6.2.2.1	Polytypbestimmung mit XPD	56
6.2.2.2	Polytypbestimmung mit ECP	65
6.2.2.3	Polytypbestimmung mit LEED	67
6.2.2.4	Polytypbestimmung mit RHEED	69
6.2.3	Anwendungsbeispiele	72
6.2.3.1	Wachstum von 3C auf 4H	72
6.2.3.2	Vergleich von 2H SiC und 2H AlN	73
6.2.3.3	Polytypabhängige Peakaufspaltung und Mehrfachstreueffekte	74
6.2.3.4	Oberflächenpräparation von 6H SiC mittels Wasserstoff	78
6.2.3.5	Energieabhängigkeit der Channellingmuster von 3C SiC	82
6.3	Elektronenbeugung bei 1keV: eine vergleichende Betrachtung	84
6.3.1	Volumeneffekte der XPD im Blochwellenmodell	84
6.3.1.1	3C SiC: Beugungseffekte im Blochwellenmodell und im SSC-Modell	85
6.3.1.2	2H AlN: Elementabhängigkeit der Beugung	88
6.3.2	Einfachstreusimulationen für die quasielastische Rückstreuung an Oberflächen	90
7	Zusammenfassung	92
A	Zusammenstellung wichtiger Daten	101
B	Software	102
B.1	ESPANA	102
B.2	CALCMAT	102
B.3	DAMAT	102
B.4	ECP	103

1 Einleitung

Die Eigenschaften eines Körpers werden von seiner Struktur beeinflusst. Eine gezielte Veränderung der Kristallstruktur und atomaren Zusammensetzung von dünnen Schichten ermöglicht deshalb zum Beispiel die Steuerung ihrer elektronischen, optischen und magnetischen Eigenschaften. Dies ist in zunehmendem Maße in der modernen Halbleitertechnologie und in der Optoelektronik von Bedeutung, wo spezielle Eigenschaften ganzer Systeme aus ultradünnen Schichten ausgenutzt werden, welche Dicken im Bereich von wenigen Atomlagen besitzen. Dabei werden die Eigenschaften solcher Schichtsysteme durch ein gesteuertes Wachstum gezielt festgelegt. Halbleiterlaser, die in Unterhaltungselektronik und Informationstechnik eingesetzt werden können, sowie schnelle Transistoren für den Mobilfunk sind nur zwei Beispiele für Bauelemente, die aus kristallinen Schichtsystemen bestehen. Die Funktion solcher Bauelemente wird zum Beispiel durch die unterschiedlichen elektronischen Bandlücken von Aluminium-Galliumarsenidschichten wechselnder Aluminiumkonzentration ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$) bestimmt.

Eine weitere Möglichkeit, die Eigenschaften dünner Schichten zu steuern, besteht darin, nicht die atomare Besetzung einer vorgegebenen Kristallstruktur zu ändern, sondern die Kristallstruktur selbst zu modifizieren. Dabei wird die chemische Zusammensetzung nicht verändert. Insbesondere in ultradünnen Schichten können wegen der gegenüber dem Volumenkristall veränderten energetischen Verhältnisse wichtige Strukturveränderungen auftreten.

Im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit steht das Material Siliziumkarbid, welches in verschiedenen kristallinen Modifikationen existiert. Diese werden als Polytypen bezeichnet und besitzen unterschiedlich große elektronische Bandlücken. Die gezielte Erzeugung von Schichtstapeln aus verschiedenen Siliziumkarbid-Polytypen (Polytyp-Heterostrukturen) ist nicht zuletzt wegen der extremen Eigenschaften von Siliziumkarbid eine Herausforderung für die aktuelle Forschung. Dabei liegen die Schichtdicken der herzustellenden Strukturen im Bereich von nur wenigen Nanometern. Zur Kontrolle der Kristallstruktur einer solchen Schicht benötigt man passende Analysemethoden. Das Ziel dieser Arbeit ist es deshalb, die Anwendungsmöglichkeiten verschiedener Methoden zur Kristallstrukturanalyse ultradünner Schichten am Beispiel von Siliziumkarbid zu untersuchen.

Elektronen sind ein Standardwerkzeug der Oberflächenanalyse, weil sie so stark mit Festkörpern wechselwirken, dass die Tiefe, aus der Informationen geliefert werden, sehr begrenzt ist. Insbesondere Beugungseffekte von Elektronen mit kinetischen Energien unter 10keV besitzen Tiefenempfindlichkeiten im Bereich von nur wenigen Nanometern, weshalb sie für die Untersuchung ultradünner Schichten ideal geeignet sind. Die benötigten Elektronen können dabei aus einer externen Quelle kommen und auf die Probe gerichtet werden oder sie werden in einem sekundären Prozess, zum Beispiel durch Röntgenstrahlung, in der Probe selbst erzeugt. Zu den letzteren Methoden gehört die in dieser Arbeit untersuchte Photoelektronenbeugung (PED), zu den ersteren die ebenfalls untersuchten Elektronenchannellingmuster (ECP), die Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED) und reflektierter hochenergetischer Elektronen (RHEED).

Ein großer Vorteil dieser Methoden ist, dass sie zerstörungsfrei arbeiten und *in-situ* im Ultrahochvakuum (UHV) genutzt werden können. Das macht sie für die direkte Analyse von Wachstumsprozessen insbesondere bei der Molekularstrahlepitaxie außerordentlich geeignet.

Bei Beginn dieser Arbeit stellte sich der Forschungsstand im Falle von Siliziumkarbid so dar, dass polytypabhängige Effekte in Photoelektronenbeugungsmustern und in Elektronenchannellingmustern von Schröter *et al.* beobachtet [26] und auf einer empirischen Basis genutzt wurden. Die Korrelation zwischen Polytyp und beobachtetem Effekt war jedoch wegen des Fehlens entsprechender Simulationsrechnungen ursächlich nur schwer zu belegen. International wurde die Methode der Photoelektronenbeugung bis dahin nicht zur Polytypunterscheidung eingesetzt. Die polytypabhängigen Effekte in den Elektronenchannellingmustern sind bis zu der vorliegenden Arbeit ebenfalls nicht durch Simulationen reproduziert worden. Die Anwendung der hier betrachteten Methoden löste das spezielle Problem der zerstörungsfreien Polytypbestimmung ultradünner Schichten im UHV, dem andere polytypempfindliche Methoden, wie zum Beispiel die Photolumineszenz, die Röntgenbeugung oder die Transmissionselektronenmikroskopie, nicht ausreichend gewachsen sind.

Nach dem sich also die Frage ergab, ob man die experimentellen Ergebnisse der Photoelektronenbeugung und der Elektronenchannellingmuster mit Simulationen untermauern kann, musste herausgefunden werden, welche Theorien zur Erklärung der beobachteten Effekte geeignet sind. Auf der Lösung dieses Problems bauen weitere Fragen auf: Welche neuen Anwendungsmöglichkeiten ergeben sich? Gibt es tiefergehende Gemeinsamkeiten zwischen den Methoden? Gibt es womöglich ähnliche polytypabhängige Effekte in anderen Methoden wie zum Beispiel RHEED, die schon in Verfahren zum Schichtwachstum etabliert sind und die man ohne größere Veränderungen zur Kontrolle des Wachstums von verschiedenen Polytypen nutzen kann?

Den Schwerpunkt dieser Arbeit bildeten zur Beantwortung der obigen Fragen die Implementation und die Anwendung effektiver Simulationsverfahren zur experimentellen Analyse von Siliziumkarbidschichten mit den erwähnten Elektronenbeugungsmethoden. Dazu wurden neue Programme zur Simulation der Photoelektronenbeugung, der Beugung rückgestreuter Elektronen und dynamischer Effekte in Elektronenchannellingmustern entwickelt, die auf unterschiedlichen theoretischen Ansätzen beruhen. Weiterhin wurden Standard-Programmpakete zur Simulation von LEED-Experimenten und für Mehrfachstreusimulationen der Photoelektronenbeugung genutzt, um spezielle Fragestellungen zu untersuchen. Damit wurde eine effektive Analyse der Vorteile und der Grenzen der einzelnen Methoden möglich und die oben gestellten Fragen konnten beantwortet werden.

Diese Arbeit ist folgendermaßen aufgebaut: Zuerst werden die untersuchten Materialien und die zu analysierenden Strukturelemente vorgestellt. Dabei wird auch eine Übersicht über die Einordnung dieser Arbeit in die weitere Forschung an Siliziumkarbidoberflächen gegeben. Es folgt eine Beschreibung der genutzten experimentellen Methoden. Dazu gehören insbesondere die Photoelektronenbeugung, die Rückstreubeugungsmuster und die Elektronenchannellingmuster.

Die für die Simulationen angewendete Theorie wird in einem weiteren Kapitel behandelt, in dem auch die Gemeinsamkeiten der eingesetzten Methoden erläutert werden.

Nach der Darstellung der Vorgehensweise bei der Auswertung der experimentellen Daten werden dann im Hauptteil die Ergebnisse vorgestellt. Dazu gehören insbesondere die Möglichkeiten der zerstörungsfreien *in-situ* Polytypen- und Polaritätsunterscheidung mittels Elektronenbeugungsmethoden und Anwendungsbeispiele in konkreten Analysen. Zur Charakterisierung der Tiefenempfindlichkeit wird der Einfluss einer Umordnung der Atome in den obersten Lagen (Oberflächenrekonstruktionen) und von verschiedenen Einheitszellenbereichen an der Oberfläche (Stapelterminierungen) diskutiert. Die Energieabhängigkeit der beobachteten Beugungsmuster wird analysiert und es werden polytypspezifische Feinstruktureffekte in den Beugungsmustern erklärt. Die erhaltenen Erkenntnisse werden dann für eine Analyse der Stufenstruktur und Stapelterminierung an Siliziumkarbidoberflächen eingesetzt, welche durch Ätzen mit Wasserstoff präpariert wurden.

Die Gemeinsamkeiten zwischen Photoelektronenbeugung und Elektronenchannellingmustern werden dazu genutzt, einen Simulationsalgorithmus der Photoelektronenbeugung an Kristalloberflächen vorzustellen, welcher es ermöglicht hat, Berechnungen vollständiger Photoelektronenbeugungsmuster im Kontext der dynamischen Kikuchi-Band-Theorie durchzuführen. Damit kann die Äquivalenz des Cluster-Ansatzes und des Kikuchi-Band-Ansatzes in beiden Richtungen an vollständigen Beugungsmustern aufgezeigt werden. Zusammen mit den analysierten Rückstreuungseffekten von Elektronen in LEED und RHEED-Experimenten trägt dies insgesamt zu einer vereinheitlichten Sichtweise von Elektronenbeugungseffekten und der Modelle, die zu ihrer Beschreibung dienen, bei.

2 Vorstellung der untersuchten Materialien

Das Material, das in in dieser Arbeit im Mittelpunkt steht, ist Siliziumkarbid (SiC). Dabei handelt es sich um einen Halbleiter, der sich durch extreme Eigenschaften auszeichnet. Bauelemente aus SiC können noch unter Bedingungen eingesetzt werden, in denen die herkömmliche Silizium- oder Galliumarsenid-Elektronik versagt.

In diesem Kapitel werden die wesentlichen Eigenschaften von Siliziumkarbid zusammengestellt. Es werden zentrale Definitionen der zu analysierenden Strukturelemente gegeben, die für die spätere Diskussion der Anwendungsmöglichkeiten der Analysemethoden notwendig sind.

Zusätzlich wurde das Material Aluminiumnitrid (AlN) untersucht, da es in einer Modifikation vorliegt, von der es keine entsprechenden untersuchbaren Siliziumkarbidschichten gibt. Wegen der Nachbarschaft aller beteiligten Elemente im Periodensystem zeigt AlN in Hinsicht auf die betrachteten Elektronenbeugungsmethoden einige Gemeinsamkeiten mit SiC, die auch für einen systematischen Vergleich ausgenutzt werden.

2.1 Siliziumkarbid SiC

2.1.1 Physikalische Eigenschaften und Anwendungen

Bei seinen Versuchen, künstliche Diamanten herzustellen, produzierte Edward G. Acheson 1891 die ersten Siliziumkarbidkristalle. Siliziumkarbid in seiner Eigenschaft als Halbleiter besitzt eine große Bandlücke, eine sehr gute Wärmeleitfähigkeit und eine hohe Durchbruchfeldstärke. Zusammen mit seiner großen Härte, seiner Temperaturbeständigkeit, seiner extremen chemischen Widerstandsfähigkeit und Unempfindlichkeit gegen radioaktive Strahlen führt das zu Anwendungsmöglichkeiten, die mit herkömmlichen Halbleitern nicht zu verwirklichen sind. Dazu gehören Anwendungen bei hohen Temperaturen, zum Schalten hoher Frequenzen und in der Leistungselektronik. Es ist als piezoelektrischer Drucksensor und als Temperaturfühler einsetzbar [7]. Außerdem sind Anwendungen in der Optoelektronik möglich.

SiC wird nicht durch Säuren oder Mischungen von Säuren angegriffen, nur bei Temperaturen über 1000°C lässt es sich durch Cl_2 , F_2 und auch H_2 ätzen [7], was insbesondere zur Oberflächenpräparation ausgenutzt wird.

SiC-Einkristalle können durch ein Sublimationsverfahren hergestellt werden, bei dem SiC-Pulver bei hohen Temperaturen in einem Reaktor zersetzt wird. An einem Ausgangskeim wächst dann der Einkristall (modifiziertes *Lely*-Verfahren). Die Herstellung von dünnen SiC-Schichten hoher Qualität ist mit Epitaxietechniken möglich. Am weitesten verbreitet ist die Chemical Vapor Deposition (CVD) zur Herstellung von elektronischen Bauelementen. Molekularstrahlepitaxie (MBE) ermöglicht Schichten höchster Reinheit und ist auch zum Abscheiden definierter Polytypen (siehe unten) geeignet [27].

In natürlicher Form kommt SiC auf der Erde in Meteoriten als Mineral *Moissanit* vor [28]. Ein ungewöhnliches, aber einträgliches Anwendungsgebiet von SiC liegt in der Produktion von künstlichen *Moissanit*-Edelsteinen, die ähnlich herausragende Eigenschaften wie Diamanten

besitzen. Interessanterweise führen die ästhetischen Ansprüche der Käufer solcher Edelsteine zu den gleichen Anforderungen an Defektfreiheit und Reinheit der Kristalle wie in der Elektronik [29].

2.1.2 Kristallstruktur und Polytypismus

Die Kristallstruktur von Siliziumkarbid kann auf der Grundlage von dichten Kugelpackungen beschrieben werden. Für eine Schichtfolge hexagonal dicht gepackter Kugeln gibt es insgesamt drei verschiedene Stapelplätze, die mit A, B und C bezeichnet werden (siehe Abbildung 2.1). Ein Kristall kann durch eine periodische Aufstapelung solcher Schichten aufgebaut werden. Jede solche Stapelfolge definiert dann einen sogenannten *Polytyp*. Neben SiC zeigen u.a. auch CdI_2 und ZnS Polytypismus, für SiC sind etwa 200 Polytypen bekannt.

Die Kugeln in Abbildung 2.1 sind im SiC durch Si-C-Dimere realisiert, deren Si- bzw. C-Atome zu der nächsten Stapelschicht jeweils tetraedrisch koordiniert sind. In Abbildung 2.2 sind die zwei möglichen Stapelwechsel AB und AC gezeigt. Die Si-Atome der einen Lage und die C-Atome der nächsten Lage definieren eine *Doppellage*. Da es nur zwei verschiedene Stapelwechsel gibt, kann der gesamte Kristall aus den zwei nicht äquivalenten Doppellagen (in Abbildung 2.2 mit 1 und 2 bezeichnet) aufgebaut werden. Beide Doppellagen gehen durch eine Drehung um 180° ineinander über. Folgen die beiden verschiedenen Doppellagen aufeinander (2 auf 1 oder 1 auf 2), so wird das als *Stapelfehler* oder als *hexagonale* Stapelung bezeichnet - gegenüber einer perfekten oder *kubischen* Stapelung, bei der alle Doppellagen in derselben Orientierung vorliegen (nur 2 oder nur 1).

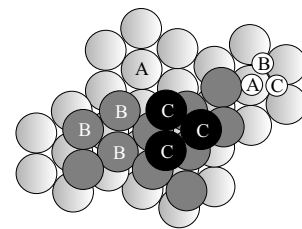


Abb. 2.1: Hexagonale Kugelpackungen

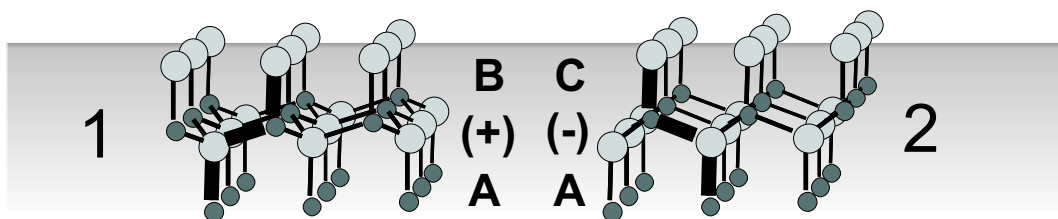


Abb. 2.2: Die 2 möglichen Stapelwechsel AB (1) und AC(2)

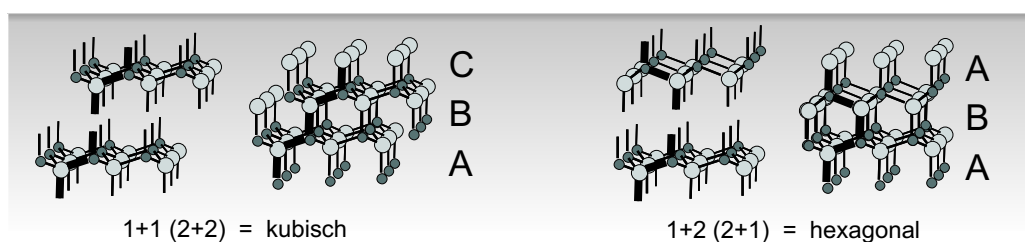


Abb. 2.3: Kubische und hexagonale Stapelung

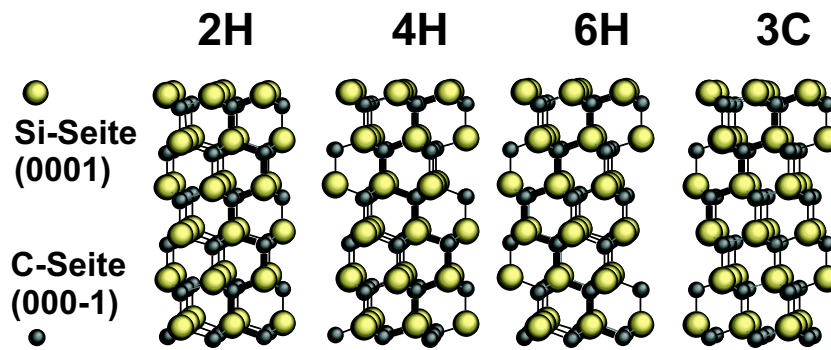


Abb. 2.4: Kristallstruktur einiger Polytypen (C-Atome schwarz)

Doppellage übereinander, so erhält man ein kubisches Gitter, in dem die Si-C-Dimere nach dem Schema ABC... angeordnet sind (Abbildung 2.3). Die Raumdiagonale der Elementarzelle liegt dabei entlang der Stapelachse. Der entsprechende Polytyp wird historisch als β -SiC oder in der sogenannten Ramsdell-Notation [30] als 3C bezeichnet. Dabei steht das „C“ für das kubische Gitter und die „3“ für die 3 Lagen, aus denen sich eine Elementarzelle aufbaut. Alle anderen Polytypen enthalten Stapelfehler (Abbildung 2.3) und werden als α -SiC zusammengefasst. Sie besitzen entweder ein hexagonales Gitter (Buchstabe „H“: 2H, 4H, 6H) oder ein rhomboedrisches Gitter (Buchstabe „R“: 15R, 21R). Eine Zusammenstellung der Kristallstrukturen von 2H, 4H, 6H und 3C ist in Abbildung 2.4 gezeigt. Alternativ können für alle Polytypen die Stapelfolgen in der oben benutzten ABC-Notation angegeben werden (6H=ABCACB, 4H=ABCB, 2H=AB). Der Anteil der hexagonalen an allen Stapelungen der Elementarzelle wird als *Hexagonalität* bezeichnet. Extremfälle sind die Polytypen 3C mit Hexagonalität 0 und 2H mit Hexagonalität 1. Von Hägg [31] stammt eine weitere Notation, bei der die beiden verschiedenen Doppellagen mit „+“ und „-“ bezeichnet werden (Abb. 2.2). Eine so explizit gekennzeichnete Stapelfolge ist sehr leicht interpretierbar. Einem Stapelfehler entspricht darin der Wechsel des Vorzeichens, bei kubischer Stapelung wechselt das Vorzeichen nicht.

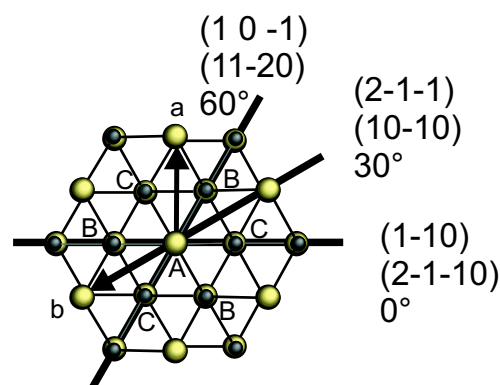


Abb. 2.5: Draufsicht auf das SiC-Gitter aus Richtung (0001) und Bezeichnung der Schnittebenen im hexagonalen und kubischen System. Azimutwinkel der Ebenen im experimentellen Polarkoordinatensystem (vgl. dazu auch Kapitel 5).

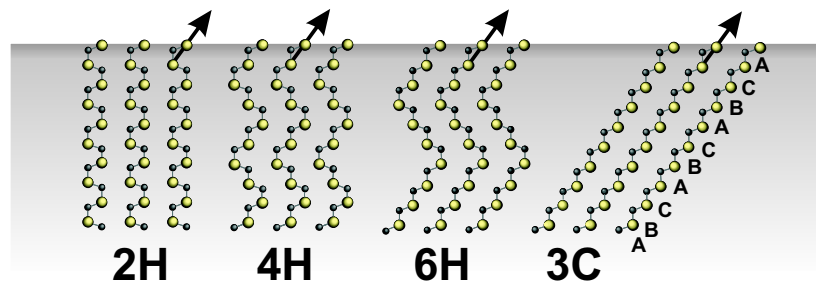


Abb. 2.6: (11-20)-Ebene in 2H, 4H, 6H, 3C

Besonders gut sichtbar werden die Unterschiede zwischen den Polytypen in der (11-20)-Ebene der Kristalle. Dort befinden sich auch die Tetraederbindungen, die entweder von Lage zu Lage in dieser Ebene in der gleichen Richtung fortgesetzt werden können (kubische Stapelung), oder sie wechseln von einer Lage zur nächsten die Richtung (hexagonale Stapelung). Für die Polytypen 2H, 4H, 6H und 3C ist diese Ebene in Abbildung 2.6 dargestellt (siehe auch Abb. 2.3). Die Lage dieser Ebene im Kristall ist aus Abbildung 2.5 ersichtlich, in der auch die Zuordnung der Indizierung im kubischen (3 Indizes) und im hexagonalen System (4 Indizes) angegeben ist.

Wichtige Eigenschaften der unterschiedlichen Polytypen sind in Tabelle A.1 zu finden. Man sieht dort zum Beispiel, dass sich die Polytypen durch unterschiedliche Bandlücken auszeichnen. Die Polytypen von SiC sind also ein ideales Beispiel für die Auswirkungen rein geometrischer Veränderungen der Atomanordnung auf die elektronische Struktur des Festkörpers [32].

2.1.3 Stapelfolgen an Oberflächen

Für den Vergleich mit dem Experiment wichtig ist die einheitliche Zuordnung von Stapelfolgen und dem experimentellen Koordinatensystem, das aus den Polarkoordinaten (θ, ϕ) bestehen soll. Mit Bezug auf einen kubischen Kristall wird die [101]-Richtung so gelegt, dass sie sich bei einem Azimut von $\phi = 60^\circ$ befindet (vgl. auch Abb. 5.1). Diese Richtung liegt entlang der Kette von Si-Atomen an den Plätzen A-B-C wie

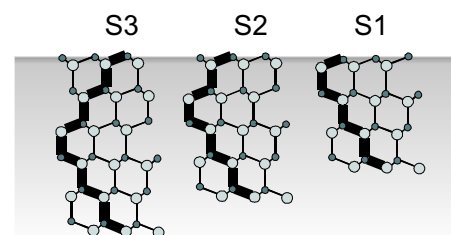


Abb. 2.7: Stapelterminierungen

in Abb. 2.6 bei einem Polarwinkel von $\theta = 35.2^\circ$. Dies ist dort auch für die anderen Polytypen eingezeichnet und soll somit einer „+“-Lage (Abb. 2.2) an der Oberfläche entsprechen. Die in Abb. 2.6 gezeigte Terminierung der Polytypen an einer Oberfläche ist nicht die einzig mögliche. Die Einheitszellen der Polytypen 4H und 6H können zum Beispiel an verschiedenen Stellen abgeschnitten werden. Um diese verschiedenen Möglichkeiten zu kennzeichnen, kann man die Anzahl der kubischen Stapelungen von der Oberfläche bis zum ersten Stapelfehler zählen und mit S1, S2, S3 bezeichnen (Abb. 2.7). Dies entspricht der jeweiligen Anzahl von „+“-Lagen. Die um 180° gedrehten Stapelterminierungen werden mit S1* usw. bezeichnet. Die

explizite Angabe von Stapelfolgen an der Oberfläche geschieht im folgenden in einer „+/-“-Notation, wobei eine periodische Folge durch spitze Klammern zusammengefasst wird. Eine S2-terminierte 6H-Oberfläche schreibt man dementsprechend als $++ < - - - + + + >$.

2.1.4 Herstellung von Schichten aus SiC-Polytypen

Fissel [33] hat gezeigt, wie Polytypenstapel mittels Feststoffquellen-Molekularstrahlepitaxie (Solid Source MBE) erzeugt werden können. Das Wachstum wurde bei verschiedenen Bedingungen untersucht [34–36]. Um Schichten hoher Qualität erzeugen zu können, ist eine alternierende Beschichtung mit Silizium und Kohlenstoff bei Temperaturen von 1500K bis 1600K notwendig [27, 37]. Es wurden thermodynamische Modelle aufgestellt, welche Bedingungen für die Bildung verschiedener Polytypen angeben [38, 39]. Damit wurde gezeigt, dass ein Polytypenwechsel prinzipiell möglich ist, und tatsächlich konnten verschiedene Polytypstrukturen erzeugt werden [40, 41]. Eine Beherrschung des Prozesses hängt ab von der Oberflächenpräparation, der genauen Kontrolle der Substrattemperatur und von der Oberflächenstöchiometrie. Auch theoretische Untersuchungen dazu wurden unternommen [42–44]

2.2 Aluminiumnitrid AlN

2.2.1 Physikalische Eigenschaften und Anwendungen

Aluminiumnitrid besitzt Eigenschaften, die vielversprechende Anwendungen in technologisch anspruchsvollen Gebieten ermöglichen. Es besitzt eine mit Metallen vergleichbare Wärmeleitfähigkeit, einen hohen elektrischen Widerstand, eine hohe Durchbruchfeldstärke, einen Ausdehnungskoeffizienten ähnlich dem von Silizium und ist ungiftig. Das ermöglicht Anwendungen als mikroelektronisches Substrat.

Weiterhin formt AlN kontinuierliche Legierungen mit GaN und InN, was zu einstellbaren Bandlücken führt, die für optoelektronische Anwendungen vom roten bis zum ultravioletten Spektralbereich geeignet sind. Für Anwendungen z.B. im Mobilfunkbereich sind piezoelektrische Dünnschichtresonatoren aus AlN in der Entwicklung.

2.2.2 Kristallstruktur

Aluminiumnitrid kommt hauptsächlich in der Wurtzit-Struktur vor, die dem 2H-Polytyp entspricht. Der kubische Polytyp ist metastabil, kann aber in Form dünner Schichten hergestellt werden [45]. Die Struktur von 2H-AlN ist also völlig analog zum in Abbildung 2.4 gezeigten 2H-SiC, mit den entsprechend ersetzten Al- bzw. N-Atomen und einer nur leicht veränderten Gitterkonstanten, die aus Tabelle A.1 zu entnehmen ist. Die sehr ähnlichen Gitterkonstanten von AlN und SiC ermöglichen den Einsatz von SiC als Substrat für das AlN-Wachstum. Da außerdem die Streueigenschaften für Elektronen von jeweils Al und Si, sowie C und N vergleichbar sind, kann das 2H-AlN im Rahmen der Elektronenbeugung auch als Modell für 2H-SiC verwendet werden, da dieses noch nicht in Form von Schichten hergestellt werden kann, die mit den verwendeten Methoden untersuchbar sind. Auch der 3C-Polytyp von AlN ist analog zu 3C-SiC aufgebaut. Alle strukturellen Definitionen des SiC-Abschnitts gelten ebenso.

3 Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel werden die experimentellen Methoden vorgestellt, die in dieser Arbeit verwendet wurden. Dazu gehören insbesondere die Photoelektronenbeugung mit Anregung durch Röntgenstrahlung (X-ray photoelectron diffraction, XPD¹) und die Elektronenchannellingmuster (ECP). Die Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED) und die Beugung hochenergetischer Elektronen in Reflexion (RHEED) werden als zusätzliche Beugungsmethoden benutzt. In einigen Fällen wurde zusätzlich die Rastertunnelmikroskopie (STM) zum Vergleich der Ergebnisse mit topographischen Aufnahmen von der Probenoberfläche eingesetzt.

3.1 X-ray Photoelectron Diffraction (XPD)

3.1.1 Experiment

In Abbildung 3.2 ist der schematische Aufbau des in der Arbeitsgruppe verwendeten XPD-Experiments dargestellt. Dieses befindet sich in einer UHV-Oberflächenanalyseanlage, in deren Analysekommer ein Basisdruck von $\leq 10^{-10}$ mbar aufrecht erhalten wird. Neben XPD/XPS sind an dieser Anlage die Methoden LEED, UPS (Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy) STM (Scanning Tunneling Microscopy), AES (Auger Electron Spectroscopy) und SEM (Scanning Electron Microscopy) installiert.

Auf eine Probe, die in azimuthaler und polarer Richtung beweglich ist, wird Röntgenstrahlung gerichtet, die in einer Quelle mit Aluminium- und Magnesiumanode entsteht. Die MgK_α oder AlK_α -Strahlung überträgt Energie auf Probenelektronen, von denen einige aus der Probe austreten können. Diese Photoelektronen werden auf dem Weg ins Vakuum vom Kristallgitter gebeugt. Das bedeutet, die Elektronenwellen können durch Streuprozesse auf verschiedenen langen Wegen zum Detektor gelangen und interferieren dabei entsprechend der Weglängendifferenzen. Das führt dazu, dass dann in unterschiedliche Richtungen unterschiedlich viele Elektronen mit einer bestimmten Energie emittiert werden.

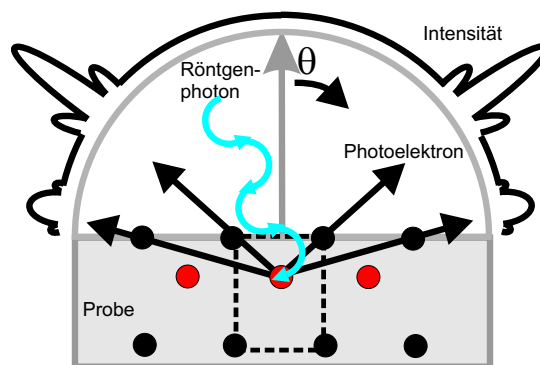


Abb. 3.1: Prinzip des XPD-Experiments

Die Methode der Photoelektronenbeugung besitzt vielfältige Anwendungsmöglichkeiten. Ihr besonderer Vorteil besteht in der chemischen Selektivität, durch die es möglich ist, ganz bestimmte Emitter einer Probe auszuwählen. Das kann über die charakteristischen Bindungsenergien der Schalen-Elektronen in den chemischen Elementen geschehen, aber auch – bei entsprechender Energieauflösung – durch die Identifizierung unterschiedlicher Atome desselben Elements in unterschiedlichen Bindungsumgebungen und der damit einhergehenden Veränderung der Bindungsenergie („chemische Verschiebung“).

¹Im Rahmen dieser Arbeit wird die Abkürzung „PED“ immer für die allgemeine Methode der Photoelektronenbeugung bei beliebiger Energie und „XPD“ speziell für die Anregung mit Röntgenstrahlen benutzt

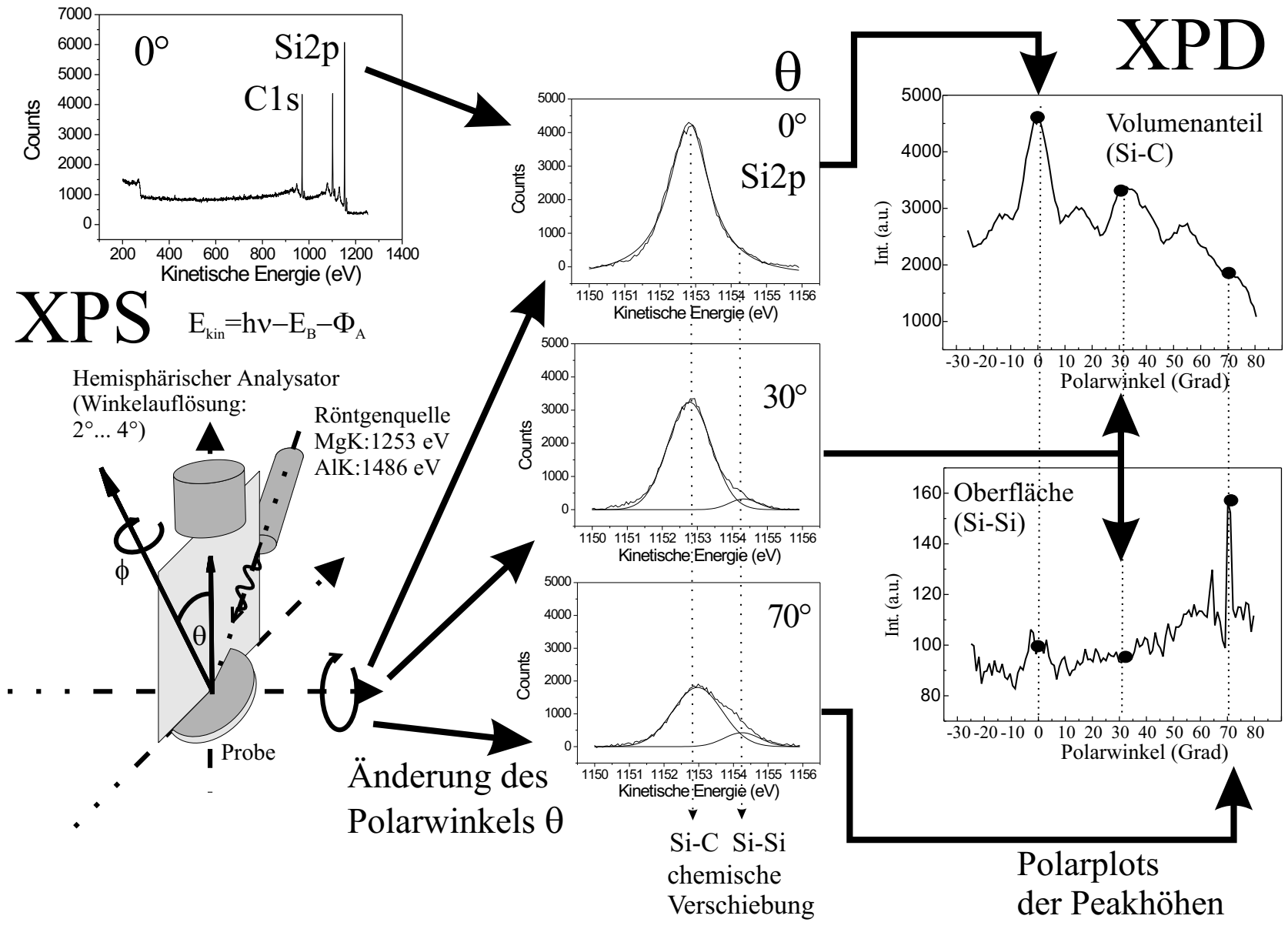


Abb. 3.2: Schematischer Aufbau und Prinzip der XPD-Messungen am Beispiel von SiC. Es ist auch die prinzipielle Möglichkeit der Trennung von Oberflächen- und Volumenanteilen der Si2p-Elektronen aufgrund unterschiedlicher Bindungsenergien gezeigt.

Wegen der starken Wechselwirkung der Elektronen mit dem Festkörper sind für die Entstehung des Beugungsmusters nur die Nachbaratome bis zu einer Entfernung von etwa 20\AA relevant. Die XPD ist also für die lokale Ordnung sehr empfindlich. Da die von einem Emitter ausgehenden Photoelektronen von den umgebenden Atomen vornehmlich in Vorwärtsrichtung gestreut werden, ergeben sich Maxima der gemessenen Intensität in den Richtungen vom Emitter zu den näheren Nachbarn. Dies macht eine unmittelbar anschauliche Interpretation der XPD-Muster möglich (Abb. 3.1). Die austretenden Elektronen können mit einem Halbkugel-Analysator (EA 200, SPECS) und einem Vielkanaldetektor in 18 Energie-Kanälen erfasst werden. Dabei werden durch Drehen der Probe Elektronen-Energie-Spektren für eine Anzahl von Richtungen aufgenommen und die Elektronen-Intensitäten bei den interessierenden Energien ausgewertet und dargestellt. Der vom Analysator erfasste Winkelbereich kann durch Blenden angepasst werden und beträgt minimal etwa 2° .

Die Messung erfolgt so, dass für eine gewählte Azimutrichtung der Polarwinkel zum Beispiel von $\theta = -2^\circ \dots 76^\circ$ in 1° -Schritten verändert wird („Polarscan“). Danach wird die Probe azimuthal gedreht und es erfolgt die nächste Polarmessung bis ein ausreichendes Gebiet des Halbraums erfasst ist.

Die Daten können für eine bestimmte Azimutrichtung als Intensitäts-Polarwinkel-Diagramm dargestellt werden („Polarplot“), für einen festen Polarwinkel als Intensitäts-Azimutwinkel-Diagramm („Azimutplot“) oder als Intensität in Abhängigkeit von beiden Winkeln gleichzeitig in stereographischer Projektion des Halbraums (siehe auch Abbildung 5.1).

Zur Steuerung der Analyseanlage und Aufnahme der Spektren dient das Programm SPECTRA [46]. Die Auswertung der Spektren (Glättung, Untergrundsubtraktion, Bestimmung der Peakhöhen und Intensitäten, Polarplots darstellen) erfolgt mit dem Programm ESPANA, das im Rahmen dieser Arbeit als Zusatzmodul für die kommerzielle Datenauswertungssoftware MICROCAL ORIGIN [47] programmiert wurde. Weiterhin wurde das Programm DAMAT zur Darstellung kompletter Beugungsmuster in verschiedenen Projektionen (Kapitel 5) erstellt (siehe auch Anhang B).

3.1.2 Anwendungen der Photoelektronenbeugung

Nach der Darstellung der experimentellen Grundlagen soll nun ein kurzer Überblick über die verschiedenartigen Anwendungen der Photoelektronenbeugung gegeben werden. Für weitergehende Übersichten sei auf einige umfassende Review-Artikel verwiesen [48–51].

Reine Kristalloberflächen Eine der ersten Untersuchungen, die sich mit dem Effekt der Photoelektronenbeugung befassten, stammt aus dem Jahre 1970 von Siegbahn [52]. Dort wird die Winkelabhängigkeit der bei der Photoelektronenspektroskopie (XPS) von NaCl-Einkristallen gemessenen Intensität mit Bragg-Reflexionen an niedrig indizierten Kristallebenen erklärt. Andere frühe Untersuchungen befassten sich mit Au-, KCl- und Si-Einkristallen und nutzten ebenfalls die auf den Bragg-Reflexionen beruhende Kikuchi-Band-Theorie zur Erklärung der ge-

nutzten Muster [53]. Weitere Untersuchungen befassten sich zum Beispiel mit TiO_2 [54], Cu [55], Si [56], NiO [57], GaAs [58] und Hochtemperatur-Supraleitern [59]. Dabei wurde erkennbar, dass einerseits ein Einfachstreumodell die Beugungsmuster bei hohen Energien relativ gut vorhersagen kann, andererseits aber für eine bestmögliche quantitative Übereinstimmung Mehrfachstreurechnungen benutzt werden müssten, deren Umfang oft nicht handhabbar wäre. Als Beispiel sei die Arbeit von Hardman und Fadley an TiO_2 (1999) erwähnt, die aufgrund der Computeranforderungen ihre MS-Rechnungen auf Cluster mit 250 Umgebungsatomen pro Emitter und höchstens fünffacher Streuung beschränken mussten [54]. Das unterstreicht die Bedeutung von Einfachstreurechnungen für die Untersuchung von Einkristalloberflächen. In der gleichen Arbeit, wie auch in anderen Untersuchungen [60–62] wurde festgestellt, dass im Energiebereich von 1 keV das Photoelektronenbeugungsmuster nicht empfindlich von der Oberflächenrekonstruktion abhängt, sondern dass für die Simulationen ideale Kristalle benutzt werden können, in denen bis zu 10 Emitterschichten berücksichtigt werden müssen.

Adsorbate auf Einkristalloberflächen In einer theoretischen Arbeit von Liebsch (1974) [63] wurde die Möglichkeit, mittels Photoelektronen Informationen über die Adsorbatgeometrie zu erhalten, das erste Mal erwähnt. Heute besteht ein Standardverfahren zur Ermittlung von Bindungslängen und -richtungen von Adsorbaten darin, energieabhängige Messungen über einen Bereich von 200 eV oder mehr unter Verwendung von Synchrotronstrahlung durchzuführen [64]. Diese experimentellen Bedingungen führen dazu, dass Mehrfachstreuprogramme, wie zum Beispiel das MSCD-Paket [65], sehr gut anwendbar sind.

Epitaktisches Schichtwachstum Die Tiefenempfindlichkeit der PED bei keV-Energien ist ideal, um ultradünne Filme zu untersuchen [66–71]. Untersucht wurde der Wachstumsmodus von Filmen [72, 73] und die auftretenden Verspannungen [74]. Halbleiter-Heterostrukturen wurden gewachsen und ebenfalls mit PED analysiert [75–77]. Weiterhin konnte das Verfahren zur Polaritätsunterscheidung von GaN [78], ZnO [79] und AlN [80] eingesetzt werden.

Fermioberflächen-Kartierung Bei Anregung der Probe mit UV-Licht kann das Valenzband untersucht werden (Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy, UPS). Die winkelaufgelöste UPS (Angle Resolved UPS, ARUPS) ist ein Standardverfahren, um die elektronische Bandstruktur eines Festkörpers zu ermitteln. Aus den gemessenen Elektronenenergien E_{kin} kann die Dispersionsrelation $E = E(\mathbf{k})$ ermittelt werden [8]. Dabei werden die Bedingungen der Energie- und Impulserhaltung (mit bestimmten Zusatzannahmen) ausgenutzt. Man hat auf dieser Grundlage ein Verfahren entwickelt, mit dem sich die Fermioberfläche von Kristallen darstellen lässt („fermi surface mapping“) [81–83].

Oberflächenmagnetismus Hat man Informationen über den Spin der emittierten Elektronen, wie das zum Beispiel bei durch Spin-Bahn-Kopplung aufgespaltenen Elektronenniveaus der Fall ist, so kann man die kurzreichweitige magnetische Ordnung an Oberflächen untersuchen [48, 50]. Die emittierte Photoelektronenintensität kann auch durch einen Wechsel der Magnetisierungsrichtung der Probe oder durch einen Wechsel der Polarisierungsrichtung der

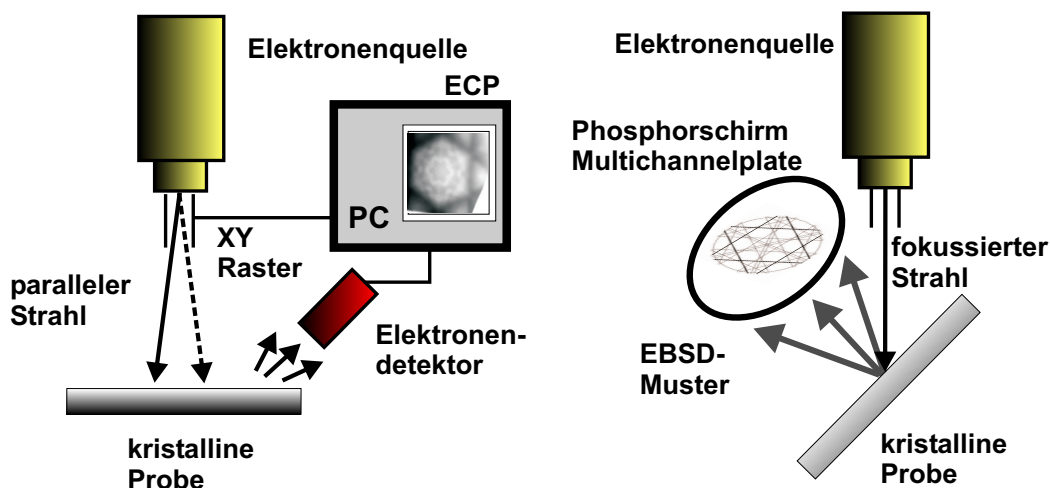


Abb. 3.3: Prinzip der Elektronenchannellingmuster (ECP) und der Elektronenrückstreubeugung (EBSD)

einfallenden Röntgenstrahlung beeinflussbar sein. Dieser Effekt wird als magnetischer Dichroismus bezeichnet und bietet weitere Möglichkeiten der Untersuchung von oberflächennahem Magnetismus [84].

Photoelektronenholographie Die direkte Bestimmung von Atompositionen durch holographische Inversion der Beugungsmuster ist an einigen Testsystemen theoretisch und experimentell untersucht worden [49, 51, 85–88]. Die Holographie mit Photoelektronen kann nach den vorliegenden Untersuchungen als Hilfsmethode zum Aussuchen vielversprechender Adsorbatgeometrien angesehen werden. Dass für die Photoelektronenholographie umfangreiche und genaue Datensätze bei verschiedenen Energien benötigt werden, die Interpretation dieser Daten als Vorwärtstremuster aber auch ohne Holographie relativ einfach sein kann, trug ihr den Verdacht ein, eine Methode „in search of a problem“ (Woodruff [64]) zu sein. Ob dies gerechtfertigt ist, bleibt mit der weitere Entwicklung von intensiven Synchrotronquellen, effektiveren Detektortechniken und genaueren theoretischen Ansätzen abzuwarten [51].

3.2 Elektronen-Channelling-Muster und Elektronenrückstremuster

3.2.1 Experiment

Elektronenchannellingmuster (electron channelling pattern, ECP) entstehen, wenn eine auf die Probe treffende ebene Welle durch den Kristall gebeugt wird. Abhängig vom Einstrahlwinkel bilden sich Maxima und Minima der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen an wechselnden Stellen im Kristall. Haben die eingestrahlten Elektronen eine höhere Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe der Atomkerne der Probenatome, so werden sie auch mit erhöhter Wahrscheinlichkeit zurückgestreut. Klassisch gesprochen besitzen nämlich im Kristall nur die Atomkerne eine genügend große Masse, um den Elektronen eine für die Rückstreuung notwendige Impulsänderung zu erteilen. Dabei werden Gitterschwingungen (Phononen) erzeugt und das Elektron verliert einen Energiebetrag in der Größenordnung von weniger als 0.1 eV.

Weil diese Elektronen in vielen Experimenten nicht von den elastisch gestreuten Elektronen separierbar sind, aber gleichzeitig ein Kohärenzverlust auftritt, wird diese Streuung auch als *quasielastisch* bezeichnet. Die Energien der benutzten Elektronen liegen im Bereich der für die Rasterelektronenmikroskopie üblichen Werte von etwa 1 bis 30 keV.

Für die Elektronenchannellingmuster wurde eine Elektronenquelle vom Typ STAIB EK-12-M genutzt. Ein paralleler Strahl rastert die Probe ab, und die Elektronen werden mit einem Photomultiplier-Detektor oder mit einem Channeltron detektiert. Die Strahlablenkung und Darstellung der korrespondierenden Elektronenstroms am Detektor erfolgte computergesteuert mit der Software WinDISS [89].

Eine verwandte Technik ist die Elektronenrückstreubeugung (electron backscatter diffraction, EBSD), bei der ein ortsfester Strahl auf eine Probe gerichtet wird und man die richtungsabhängige Intensität der austretenden Elektronen auf einem Schirm beobachtet. Hier sind es die Beugungseffekte auf dem Weg aus dem Kristall heraus, die zur Entstehung der beobachteten Muster führen. Die beiden Methoden sind eng miteinander verflochten [90] und können mit den gleichen theoretischen Modellen beschrieben werden (vgl. Abschnitt 4.5). Man beachte, dass man hier keine Beugungsmuster wie im Falle von LEED (Abschnitt 3.3.1) sieht, weil bei den benutzten Energien der Anteil elastisch (kohärent) zurückgestreuter Elektronen vernachlässigbar ist.

Beim Vergleich von der EBSD-Anordnung in Abbildung 3.3 mit dem LEED-Experiment in Abbildung 3.4 und RHEED in Abbildung 3.5 sieht man, dass es sich bis auf die Lage des einfallenden Strahls und die Art des Beobachtungsschirms um ähnliche Anordnungen handelt. Kann man also neben den elastisch gestreuten Elektronen, auf denen LEED und RHEED ja eigentlich beruhen, dort auch solche an Probenatomen quasielastisch rückgestreute Elektronen beobachten, so sind analoge Rückstreubeugungseffekte sichtbar. Diese Effekte stören aber häufig bei der Beobachtung der elastischen Elektronenbeugung.

3.2.2 Anwendungen

ECP und EBSD liefern mehrere Arten von Informationen [9] [91]. Die Muster spiegeln die Symmetrieelemente der Kristallstruktur wieder und können zur Identifikation von Symmetrieachsen oder Spiegelebenen dienen [92]. Da die Muster eine feste relative Lage zum Kristall besitzen, ist eine Orientierungs- und Strukturbestimmung von Kristallen und Kristalliten möglich. Dies wird zum Beispiel bei polykristallinen Proben in der Metallurgie ausgenutzt. Die Qualität der Oberfläche spiegelt sich in der Schärfe der Beugungsmuster wieder. ECP und EBSD-Muster sind deshalb zum Beispiel zur Analyse der Kristallqualität epitaktisch gewachsener Schichten geeignet [93–97]. Auch zur Quantifizierung der Schäden bei der Ionenimplantation können diese Beugungsmethoden genutzt werden [98]. Weiterhin ist die Abbildung von Versetzungen möglich, weil diese über eine Störung der Kristallstruktur einen Kontrast erzeugen [99].

3.3 Zusätzliche Methoden

3.3.1 Low Energy Electron Diffraction (LEED)

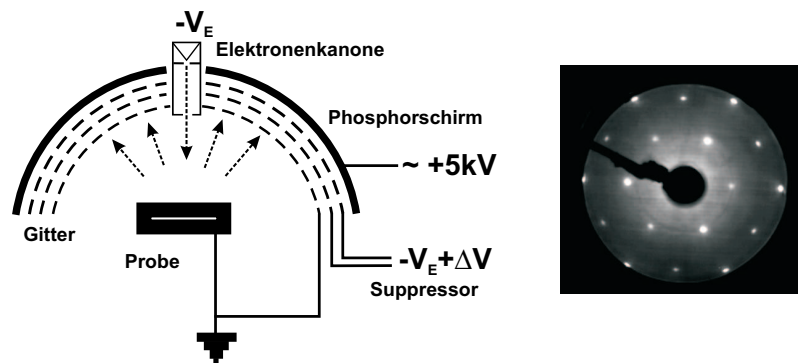


Abb. 3.4: Schematischer Aufbau eines LEED-Experiments und experimentelles LEED-Muster einer SiC-Oberfläche

Bei der Beugung niederenergetischer Elektronen (Low Energy Electron Diffraction, LEED) wird eine kristalline Probe mit einem monoenergetischen Elektronenstrahl im Energiebereich von 20..1000eV bestrahlt. Die elastisch gestreuten Elektronen verlassen die Probe in definierten Richtungen, was als Beugung am Gitter der Oberflächenatome erklärt werden kann. Da die Eindringtiefe der Elektronen bei den benutzten Energien nur sehr begrenzt ist, besitzt LEED eine hohe Oberflächenempfindlichkeit.

Eine typische experimentelle Anordnung ist in Abb. 3.4 gezeigt. Die Elektronenkanone mit einer Glühkathode als Quelle und elektrostatischen Fokussiermöglichkeiten befindet sich im Zentrum eines sphärischen Fluoreszenzschirms. Von den Gittern, die sich vor dem Schirm befinden, dient das erste dazu, durch ein konstantes Potential zwischen Probe und Schirm einen feldfreien Raum zu schaffen. Die Bahn der Elektronen, die von der Probe reflektiert wurden, wird dadurch nicht beeinflusst. Weitere Gitter dienen dazu, die inelastisch gestreuten Elektronen zu unterdrücken (Suppressor) und die elastischen Elektronen auf den Leuchtschirm zu beschleunigen. Der Leuchtschirm wird von hinten beobachtet, die Elektronenkanone befindet sich immer im Blickfeld.

Das Beugungsmuster besteht aus charakteristischen Intensitätsmaxima (Spots), deren Anordnung die Symmetrie des Oberflächengitters widerspiegelt. Die Intensität der Spots hängt von der Energie der benutzten Elektronen, der Beobachtungsgeometrie und der Oberflächenstruktur ab. Zur Bestimmung einer Oberflächenstruktur kann die Intensität der Spots in Abhängigkeit von der Elektronenenergie als sogenannte „I-V-Kurve“ gemessen werden. Diese wird dann mit Simulationsrechnungen für plausible Modelle verglichen. Je nach der Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment wird ein Modell akzeptiert oder verworfen.

In direkter Weise kann LEED zur Kontrolle der Oberflächenqualität bei einer Präparation benutzt werden. Da die Beugungsmuster durch kohärente Überlagerung der reflektierten Wellen von Oberflächenbereichen mit Durchmessern um 100\AA entstehen [10], ist LEED für lang-

reichweitige Ordnung empfindlich. Ein scharfes LEED-Muster kann also als Indikator für eine entsprechend gut geordnete Oberfläche dienen. Da die Oberflächenstöchiometrie über Oberflächenrekonstruktionen auch das Beugungsmuster beeinflussen kann, ist LEED sehr effektiv zur Oberflächenpräparation nutzbar.

3.3.2 Reflection High Energy Electron Diffraction (RHEED)

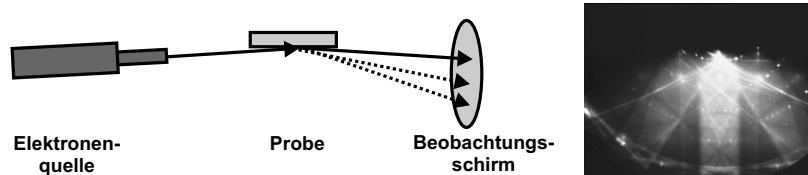


Abb. 3.5: Prinzip der Reflexionsbeugung schneller Elektronen bei streifendem Einfall (RHEED) und Beugungsbild einer SiC-Oberfläche

Im Vergleich zu LEED arbeitet die Methode der Reflexionsbeugung schneller Elektronen (Reflection High Energy Electron Diffraction, RHEED) mit einer Elektronenquelle bei viel höheren Energien von 15..100keV. Oberflächenempfindlichkeit wird dadurch erreicht, dass bei streifendem Einfall beobachtet wird. Da die Einfallswinkel zur Oberfläche dabei kleiner als 5° sind, können die Elektronen nur in geringem Maße in die Probe eindringen und es entstehen ausreichend intensive reflektierte Strahlen. Diese werden dann auf einem Fluoreszenzschirm beobachtet. Da die gesamte Anordnung mit relativ großen Abständen zur Probe betrieben werden kann, hat sich RHEED als eine Standardmethode zur Wachstumskontrolle während der Molekularstrahlepitaxie etabliert. Dabei können während des Wachstums einzelner Atomlagen Intensitätsschwankungen der RHEED-Spots beobachtet werden, die zur atomlagengenauen Wachstumssteuerung genutzt werden [11].

3.3.3 Rastertunnelmikroskopie (STM)

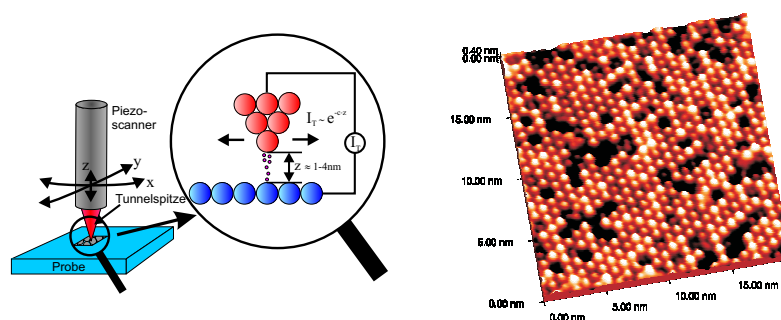


Abb. 3.6: Prinzip der Rastertunnelmikroskopie und Bild einer SiC-Oberfläche

Bei der Rastertunnelmikroskopie (Scanning Tunneling Microscopy, STM) wird eine atomar scharfe Spitze mechanisch mittels Piezoscannern über einen Probenbereich gerastert. Der Tunnelstrom zwischen Spitze und Probe hängt exponentiell vom Abstand der beiden ab und kann

zur Abbildung der Oberfläche genutzt werden. Dabei wird entweder die Auslenkung der Spitze bei konstantem Strom oder der Strom bei konstanter Spitzenauslenkung zur Darstellung benutzt.

3.4 Bisherige Untersuchungen an SiC-Oberflächen

Die Kristallstruktur an Siliziumkarbidoberflächen hat direkte Auswirkungen auf die Prozesse der Oxidation, des Schichtwachstums und des Polytypenwechsels [100]. Nicht zuletzt deshalb wurden reine und oxidierte Siliziumkarbidoberflächen mit einer großen Palette verschiedener Oberflächenanalysemethoden untersucht. Dazu gehören qualitative Analysen der Stöchiometrie und Symmetrie der Oberflächen mittels elektronenspektroskopischer Methoden und niederenergetischer Elektronenbeugung [101–118] und die Untersuchung von Oberflächen mittels Rastertunnelmikroskopie [119–123].

Die Strukturbestimmung von SiC-Oberflächenrekonstruktionen war insbesondere mit der quantitativen niederenergetischen Elektronenbeugung (LEED) erfolgreich und führte zu Modellen für die Atomanordnung bei einer Reihe von Oberflächenstrukturen. Von den Arbeitsgruppen aus Erlangen konnten dazu die umfassenden Möglichkeiten von LEED (kombiniert mit weiteren Methoden) in einer Reihe von Veröffentlichungen demonstriert werden. So wurden zum Beispiel Modelle für die (3×3) [124–126] und $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktionen [127] auf der Si-Seite gefunden. C-Seiten wurden in [128, 129] untersucht. Die Stufenstruktur an der Oberfläche mit unterschiedlichen Stapelterminierungen wurde analysiert [130–132] und Fragen der Oberflächenoxidation und -passivierung untersucht [133–136]. Insgesamt wurde die zentrale Rolle der Oberflächenstruktur für ein kontrolliertes SiC-Wachstum herausgestellt [127, 133, 137].

Auch mit der Photoelektronenbeugung sind Untersuchungen an SiC durchgeführt worden. Dabei sind sowohl der Einfluss von Oberflächenrekonstruktionen [138, 139], als auch die Merkmale der Kristall-Emission [140–142] untersucht worden. Mit Synchrotronstrahlung wurde eine Untersuchung unter Ausnutzung der chemischen Verschiebung der Oberflächenatome durchgeführt [143]. Die veröffentlichten Analysen beziehen sich alle entweder auf 3C oder 6H-SiC. Zwar wurde das Wachstum von 3C auf 6H mittels XPD und anderen Techniken untersucht [144, 145], eine systematisch angelegte Untersuchung von verschiedenen Polytypen mittels XPD erfolgte bis jetzt von keiner anderen Arbeitsgruppe als unserer [1, 2, 4].

Die vorliegende Arbeit ordnet sich hier so ein, dass besonders die Struktur von Schichten mit Dicken im Bereich von wenigen Nanometern untersucht werden soll, um Aussagen über den wachsenden Polytyp machen zu können. Das Wechselspiel zwischen Oberflächenempfindlichkeit und Tiefeninformation in den Beugungsmethoden soll genutzt werden, um die in der Nähe der Oberfläche gelegenen ersten Kristallschichten zu analysieren, ohne von der Oberflächenrekonstruktion zu sehr beeinflusst zu werden.

4 Theoretische Grundlagen und Simulationsmodelle

In diesem Kapitel werden zunächst die Grundlagen der Elektronenbeugung kurz dargestellt. Dann wird auf spezielle Modelle der Photoelektronenbeugung und der Elektronenchannellingmuster genauer eingegangen. Schließlich erfolgt eine Diskussion der Gemeinsamkeiten und der Grenzen der einzelnen Modelle.

4.1 Elektronenbeugung im Festkörper - allgemeine Grundlagen

4.1.1 Elektronenstreuung am Atom

Die Streuung am einzelnen Atom, das das grundlegende Aufbauelement des Festkörpers bildet, ist auch die Grundlage für die komplexer zusammengesetzten Streuprozesse des Kristalls. Im Rahmen dieser Arbeit werden die streuenden Atome als kugelsymmetrische Potentiale behandelt $V(r)$ mit

$$\begin{aligned} V(r) &= U(r) & r < a \\ V(r) &= \text{const} & r \geq a \end{aligned} \quad (4.1)$$

Für ein freies Atom ist $\text{const} = 0$. Ein Festkörper kann ebenfalls durch solche Potentialkugeln beschrieben werden (muffin-tin Modell). Diese Kugeln dürfen sich nicht überlappen und im Zwischenraum herrscht ein konstantes Potential (muffin-tin Konstante).

Ein Elektron soll nun aus dem Unendlichen auf ein Streuzentrum bei $r = 0$ treffen, welches das Potential 4.1 besitzt. Die einfallende Welle soll als eine ebene Welle $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ beschreibbar sein. Die gestreute Welle kann dann asymptotisch als Überlagerung aus der einlaufenden ebenen Welle und aus einer auslaufenden Kugelwelle – die vom Streuzentrum ausgeht – zusammengesetzt werden:

$$\psi_k(\mathbf{r} \rightarrow \infty) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + f(\theta, k) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (4.2)$$

Der Winkel θ ist dabei der Winkel, um den das Teilchen durch die Streuung abgelenkt wurde. Die Streuamplitude $f(\theta, k)$ kann nach der Methode der Partialwellenzerlegung berechnet werden [12]. Dabei wird die einfallende Welle nach Partialwellen mit definiertem Drehimpuls l entwickelt, welcher wegen der Kugelsymmetrie des Streupotentials erhalten bleiben muss. Für die Streuamplitude ergibt sich dabei:

$$f(\theta, k) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{2l+1}{k} e^{i\delta_l} \sin \delta_l P_l(\cos \theta), \quad (4.3)$$

Diese ist aus den „Streuphasen der l -ten Partialwelle“ (phase shifts) δ_l also direkt berechenbar. Damit ist das eigentliche Streuproblem gelöst, wenn man die Streuphasen kennt. In praktischen Rechnungen kann man die Summe nach einem maximalen l abbrechen, welches von der Energie des Teilchens und vom Streupotential abhängt. Dieses maximale l kann über quasiklassische Betrachtungen abgeschätzt werden [10]:

$$l \leq kR_0 \quad (4.4)$$

Die Partialwellenmethode wird für steigende Energien immer unhandlicher, da die Anzahl der

benötigten Streuphasen ansteigt. Die Berechnung der Streuphasen erfolgt durch numerische Integration der Schrödingergleichung ausgehend vom Ursprung bis zur Potentialgrenze bei $r = a$ und Anpassung an die dortigen Randbedingungen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dafür die Software der „Barbieri - Van Hove phase shift package“ [146] benutzt, welche auch die Konstruktion des benötigten muffin-tin Potentials erlaubt.

Die auslaufende Kugelwelle kann auch an einem weiteren Atom gestreut werden. Dann muss das allgemeinere Problem der Kugelwellenstreuung behandelt werden. In erster Näherung kann der Kugelwellencharakter der einfallenden Welle durch eine Korrektur im Streufaktor f beschrieben werden kann (Spherical Wave Approximation [147]):

$$f_{eff}(\theta, k, R) = \sum_l \frac{(2l+1)}{k} e^{i\delta_l} \sin \delta_l P_l(\cos \theta) \left(1 + \frac{l(l+1)}{2(kR)^2}\right)^{1/2} \exp \left[i \frac{l(l+1)}{2kR} \right] \quad (4.5)$$

Dieser effektive Streufaktor hängt von der Entfernung R zum vorhergehenden Streuer ab. Eine exakte Beschreibung der Kugelwellenstreuung ist bei Mehrfachstreuprozessen nötig und erfolgt im Abschnitt 4.1.3.

4.1.2 Modellierungsansätze für Festkörper

4.1.2.1 Kinematische Theorie

Viele Effekte der Elektronenbeugung in einem kristallinen Festkörper können durch den Rückgriff auf wenige grundlegende Elemente erklärt werden. Dazu gehören im wesentlichen die oben erwähnte Streuung an einzelnen Atomen und die Bragg-Reflexion von Elektronenwellen an einer Schar von Gitterebenen.

Ein Strahl wird in einem Winkel θ von Gitterebenen im Abstand d reflektiert, wenn die Bedingung $n\lambda = 2d \sin \theta$ erfüllt ist. Diese Bragg-Bedingung ist ein Spezialfall der Laue-Gleichungen für die Impulsänderung bei einer Streuung am Kristall. Danach ist die Bragg-Bedingung erfüllt, wenn die Impulsänderung einem reziproken Gittervektor entspricht:

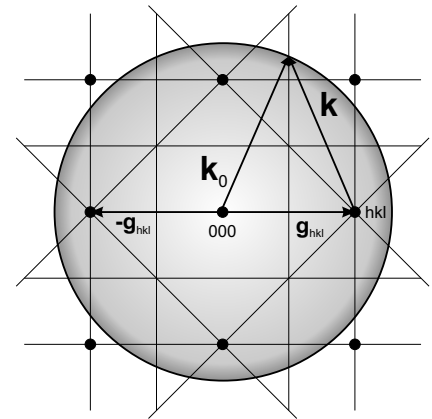


Abb. 4.1: Brillouin-Zonen und Reflexions-sphäre zur Beschreibung der Beugung von Punktquellen ausgehender Wellen

$$\mathbf{k}_0 - \mathbf{k} = \mathbf{g} \quad \text{mit} \quad |\mathbf{k}_0| = |\mathbf{k}| \quad \text{und} \quad g_i \cdot a_j = 2\pi \delta_{ij} \quad (4.6)$$

Darin sind die Komponenten g_i der reziproken Gittervektoren \mathbf{g} über die Gittervektoren \mathbf{a} des Ortsraums definiert. Jeder reziproke Gittervektor entspricht im Ortsraum einem Satz reflektierender Gitterebenen.

Gleichung 4.6 kann in die anschauliche Konstruktion der Ewald-Kugel umgesetzt werden, die für einen einfallenden Strahl die möglichen Reflexe angibt. Für den Fall einer Punktquelle im Kristall ist jedoch eine Konstruktion besser geeignet, die auf den Brillouin-Zonen beruht [148].

Wie in Abbildung 4.1 gezeigt, wird eine Kugel mit dem Radius des Wellenvektors der Elektronen und ihrem Mittelpunkt am Ursprung des reziproken Gitters gezeichnet. An allen Stellen, an denen diese Kugel eine Brillouinzonengrenze schneidet, ist eine Reflexion nach dem Bragg'schen Gesetz möglich. Die Projektion der entsprechenden Wellenvektoren auf den Beobachtungsschirm ergibt dann die Lage der Bragg-Bedingung für die von der Punktquelle ausgesendeten Elektronen. Im Falle der Elektronenbeugung werden die entstehenden Linien als Kikuchi-Linien bezeichnet.

4.1.2.2 Mehrfachstreumodelle und das Reziprozitätsprinzip

Eine über die kinematische Theorie hinausgehende Beschreibung ermöglichen Methoden, welche die Mehrfachstreuung der Elektronen im Kristall berücksichtigen. Da Elektronen stark mit Atomen wechselwirken, spielen solche Mehrfachstreuereignisse eine wichtige Rolle. Die Berücksichtigung der Mehrfachstreuung ist entlang zweier verschiedener Wege möglich. Einmal kann man ausnutzen, dass bei geringen kinetischen Energien die Elektronen nur eine sehr begrenzte Reichweite im Kristall haben. Man kann deshalb versuchen, alle möglichen Pfade mit einer bestimmten maximalen Anzahl von Streuereignissen direkt aufzusummieren. Besonders bei oberflächenempfindlichen Methoden mit Elektronenenergien unter 1keV (PED, LEED) wird dieser Weg beschritten, da er eine flexible Modellierung beliebiger Atomanordnungen ermöglicht. Andererseits kann man die Voraussetzung ausnutzen, dass die Elektronen sich in einem periodischem Medium befinden und deshalb ihre Wellenfunktion bestimmten Bedingungen genügen muss (Bloch-Theorem).

Ein wichtiges Prinzip für die Diskussion von Elektronenbeugungsmethoden ist das Reziprozitätsprinzip [13]. Dieses besagt, dass eine Welle, die von Punkt A ausgeht, an einem Punkt B die gleiche Intensität erzeugt wie eine von B ausgehende Welle im Punkt A. Dieses Prinzip gilt auch für die Streuung von Elektronen, insbesondere auch bei Vorhandensein inelastischer Prozesse [149]. Laue hat dieses Prinzip zur Erklärung von Beugungseffekten von Punktquellen in Kristallen genutzt [14]. Eine Prinzipskizze in Abb. 4.2

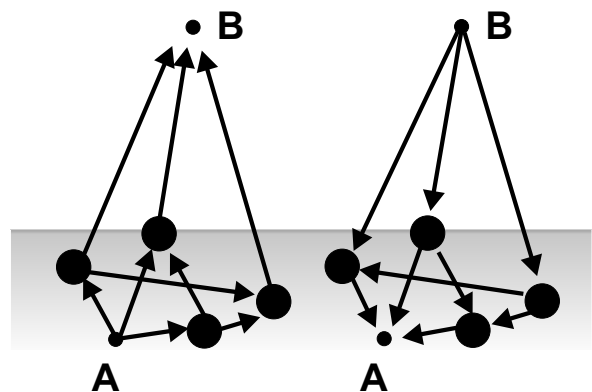


Abb. 4.2: Reziprozitätsprinzip

erläutert diesen Gedankengang für einige ausgewählte Streupfade, die ein Elektron von A nach B nehmen könnte. Man kann daraus zum Beispiel folgern, dass man die Intensität, die von einer Punktquelle A im Kristall ausgeht und an einem Detektor B außerhalb gemessen wird, auch so berechnen kann, dass man eine Welle vom Detektor B in die Probe hineinlaufen lässt und die Intensität am Ort A des Emitters berechnet. Dies besitzt in bestimmten Fällen rechnerische Vorteile und wird in dieser Arbeit zur Simulation von Elektronenchannellingmustern und

Photoelektronenbeugungsmustern ausgenutzt, um die nahe Verwandtschaft dieser Methoden zu zeigen.

4.1.3 Cluster-Mehrfachstreuungstheorie – allgemeiner Formalismus

Elektronenbeugungseffekte an Oberflächen können sehr umfassend unter Benutzung der Streutheorie beschrieben werden [15]. In diesem Abschnitt soll deshalb ein Überblick über den allgemeinen Formalismus der Mehrfachstreuung von Elektronen in Clustern von Atomen gegeben werden. Die Diskussion erfolgt am Beispiel der Photoelektronenbeugung ausgehend von der Darstellung in [150]. Die Photoelektronen gehen von Emitttern im Innern der Probe aus und werden in einem externen Detektor nachgewiesen. Dies entspricht dem Weg von A nach B in Abb. 4.2. Der hier vorgestellte allgemeine Formalismus wird später vor allem in der vereinfachten Version des Einfachstreumodells eingesetzt.

Die Wellenfunktion der Photoelektronen kann im Rahmen einer zeitabhängigen Störungsrechnung durch die folgende Integralgleichung ausgedrückt werden:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \frac{2m}{\hbar^2} \int G(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E) H_q(\mathbf{r}') \varphi_i(\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}' \quad (4.7)$$

mit

$$E = \hbar^2 K^2 / 2m, \quad \mathbf{K} = K\mathbf{r}/r$$

Darin beschreibt die Wellenfunktion φ_i das Elektron im Ausgangszustand und H_q den ortsabhängigen Anteil des Störoperators der Photonen. Die Greensche Funktion G beschreibt die Bewegung der durch die Photonen erzeugten Photoelektronen im Potential V und kann mit Hilfe der den Streuprozess charakterisierenden T-Matrix und der Greenschen Funktion der freien Elektronen G_0 ausgedrückt werden (unter Einführung einer verkürzenden Schreibweise):

$$G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) + \int \int G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1) T(\mathbf{r}'_1, \mathbf{r}'_2) G_0(\mathbf{r}'_2, \mathbf{r}_2) d^3\mathbf{r}'_1 d^3\mathbf{r}'_2 \equiv G_0 + G_0 T G_0 \quad (4.8)$$

Darin ist $G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = G_0(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)$ die Lösung der inhomogenen Schrödingergleichung:

$$(\Delta + K^2) G_0(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) = \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \quad (4.9)$$

Die Gleichung 4.7 kann als Streuproblem umformuliert werden, bei dem sich die Wellenfunktion Ψ aus einer direkten Welle Ψ_0 und einem gestreuten Anteil zusammensetzt. Da das angeregte Photoelektron sofort durch das Emitterpotential gestreut wird, ist es zweckmäßig, dies in der Definition der direkten Welle mittels einer atomaren Greenfunktion G_a zu berücksichtigen. Das Streuproblem für einen Emitter bei $\mathbf{R}_0 = 0$ sieht dann folgendermaßen aus:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \Psi_0(\mathbf{r}) + \int \int G_0(\mathbf{r} - \mathbf{r}') T_1(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \Psi_0(\mathbf{r}'') d^3\mathbf{r}' d^3\mathbf{r}'' \equiv \Psi_0 + G_0 T_1 \Psi_0 \quad (4.10)$$

mit

$$\Psi_0(\mathbf{r}) = \frac{2m}{\hbar^2} \int G_a(\mathbf{r}, \mathbf{r}') H_q(\mathbf{r}') \varphi_i(\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}' \quad (4.11)$$

Die atomare Greenfunktion ist darin über die atomare Streumatrix $t^{\mathbf{R}_0}$ des Emitters definiert:

$$G_a = G_0 + G_0 t^{\mathbf{R}_0} G_0 \quad (4.12)$$

Die Matrix T_1 beschreibt den Einfluss der den Emitter umgebenden Atome und kann additiv aus den möglichen Beiträgen dieser einzelnen Streuer zusammengesetzt werden:

$$T_1 = \sum_{\mathbf{R}_1 \neq \mathbf{R}_0} t^{\mathbf{R}_1} + \sum_{\mathbf{R}_2 \neq \mathbf{R}_1 \neq \mathbf{R}_0} t^{\mathbf{R}_2} G_0 t^{\mathbf{R}_1} + \dots \quad (4.13)$$

Bildlich gesprochen entspricht dies den einzelnen Wegen, die ein Elektron vom Emitter aus nehmen kann und auf denen Streuprozesse an den Atomen stattfinden. Dabei werden nur Wege betrachtet, auf denen das Elektron nie zweimal hintereinander am selben Atom gestreut wird, da alle Mehrfachstreuprozesse im Atom selbst schon in den atomaren Streumatrizen zusammengefasst sind.

Benutzt man die Drehimpulsdarstellung der atomaren Greenfunktion G_a , so kann die direkte Welle Ψ_0 außerhalb des Emitterpotentials als Kombination von Kugelwellen $h_l^+ Y_L$ geschrieben werden:

$$\Psi_0(\mathbf{r}) = -iK \sum_L h_l^+(Kr) Y_L(\mathbf{r}) M_{LL_c} \quad (4.14)$$

mit

$$M_{LL_c} = \frac{2m}{\hbar^2} e^{i\delta_l} < \Phi_l Y_L | H_q | \Phi_{l_c} Y_{L_c} > \quad (4.15)$$

Darin repräsentiert der Index L die Kombination der Quantenzahlen (l, m) und M_{LL_c} das Matrixelement für den Übergang aus dem Ausgangszustand φ_i mit den Quantenzahlen (l_c, m_c) in einen angeregten Zustand mit den Quantenzahlen (l, m) . Die Benutzung der Dipolnäherung für den Störoperator H_q führt dazu, dass nur Übergänge mit $l = l_c \pm 1$ zur direkten Welle beitragen. H_q ist dann durch $H_q = C \epsilon \cdot \mathbf{r}$ gegeben, wobei C eine Konstante und ϵ der Polarisationsvektor des einfallenden Lichts ist. Der Ausgangszustand kann durch eine atomare Wellenfunktion angenähert werden: $\varphi_i \approx \Phi_{l_c} Y_{L_c}$, wobei Φ_{l_c} die reguläre Lösung für den radialen Anteil der Schrödingergleichung für ein Elektron mit der Bindungsenergie E_c ist. Analoges gilt für die Funktion Φ_l des angeregten Elektrons.

In einem weiteren Schritt wird die Drehimpulsdarstellung der Greenschen Funktion G_0 des freien Elektrons benötigt:

$$G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = -iK \sum_L j_l(Kr_{<}) Y_L^*(\mathbf{r}_1) h_l^+(Kr_{>}) Y_L(\mathbf{r}_2) \quad (4.16)$$

mit den sphärischen Besselfunktionen j_l , $r_{<} = \text{Min}(|\mathbf{r}_1|, |\mathbf{r}_2|)$ und $r_{>} = \text{Max}(|\mathbf{r}_1|, |\mathbf{r}_2|)$. Zusammen mit der Formel für die Entwicklung von Kugelwellen um den Ort \mathbf{r} nach Kugelwellen um den Ort $\mathbf{r} + \mathbf{R}$

$$h_l^+(K|\mathbf{r} + \mathbf{R}|) Y_L(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = \sum_{L'} j_{l'}(Kr) Y_{L'}(\mathbf{r}) G_{L'L}(\mathbf{R}) \quad (4.17)$$

kann man dann die Wellenfunktion der Photoelektronen 4.10 explizit als Summe von Beiträgen schreiben, die durch einzelne Pfade mit einer bestimmten Anzahl von Streueignissen geliefert werden. Dabei propagiert die Welle vom Emitter aus von Streuer zu Streuer, wobei sich die relativen Anteile der Partialwellen mit einem bestimmten Drehimpuls L bei einer Verschiebung \mathbf{R} zum nächsten Streuer entsprechend den Komponenten der Propagatormatrix $G_{L'L}(\mathbf{R})$

ändern, da die Entwicklung nach Kugelwellen nach der Verschiebung um ein anderes Zentrum erfolgt. Insgesamt erhält man damit in der Drehimpulsdarstellung für die Wellenfunktion der Photoelektronen, die von einem Emittor bei \mathbf{R}_0 ausgehen sollen, folgende asymptotische Darstellung:

$$\Psi(\mathbf{r}) \rightarrow -\frac{e^{iKr}}{r} \sum_L B_L^{\mathbf{R}_0}(\mathbf{K}) M_{LL_c}^{\mathbf{R}_0} \quad (4.18)$$

Das Matrixelement $M_{LL_c}^{\mathbf{R}_0}$ bestimmt die Gewichte der möglichen Übergänge bei der Anregung, und die Beiträge der verschiedenen Ordnungen der Mehrfachstreuung sind im Streupfadoperator $B_L^{\mathbf{R}_0}$ zusammengefasst:

$$\begin{aligned} B_L^{\mathbf{R}_0}(\mathbf{K}) &= e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_0} (-i)^l Y_L(\mathbf{K}) \\ &+ \sum_{\mathbf{R}_1 \neq \mathbf{R}_0} e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_1} \sum_{L_1} (-i)^{l_1} Y_{L_1}(\mathbf{K}) t_{l_1}^{\mathbf{R}_1} G_{L_1 L}(\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_0) \\ &+ \sum_{\mathbf{R}_2 \neq \mathbf{R}_1 \neq \mathbf{R}_0} e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_2} \sum_{L_2} \sum_{L_1} (-i)^{l_2} Y_{L_2}(\mathbf{K}) t_{l_2}^{\mathbf{R}_2} G_{L_2 L_1}(\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1) t_{l_1}^{\mathbf{R}_1} G_{L_1 L}(\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_0) \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (4.19)$$

Die Bestandteile des Streupfadoperators lassen sich in anschaulicher Weise erläutern. In der ersten Zeile steht der Anteil der direkten Welle, dann folgen jeweils die Beiträge der Einfach-, Zweifach- und Mehrfachstreuung. Die Bewegung der Elektronen wird durch die Koeffizienten $G_{L'L}$ beschrieben, die Streuung durch die $t_l^{\mathbf{R}} = i \sin \delta_l e^{i\delta_l}$ mit den für das muffin-tin Potential charakteristischen Streuphasen δ_l (siehe Abschnitt 4.1.1). Die Abfolge von Weiterbewegung und Streuung der Welle wird klar, wenn man die Gleichungen 4.19 in der für Matrizen üblichen Weise von rechts nach links liest und dabei die Abfolge der Indizes von \mathbf{R} und den Wechsel zu neuen L beobachtet.

Damit kann die Intensität der in Richtung \mathbf{K} emittierten Photoelektronen angegeben werden [150]:

$$I_{l_c}(\mathbf{K}, E, q) \propto \int_{\Delta E} dE \int_{\Delta \Omega} d\Omega \sum_{\mathbf{R}_0} \sum_{m_c} \left| \sum_L B_L^{\mathbf{R}_0} M_{LL_c}^{\mathbf{R}_0} \right|^2 \delta(E - E_c - \hbar\omega) \quad (4.20)$$

Darin entsprechen die Integrale über E und Ω der begrenzten Energie- und Winkelauflösung des Analysators. Bei Verwendung von unpolarisierter Strahlung kommt noch ein Integral über die Polarisationsrichtung ϵ hinzu. Die Photoelektronen werden aus einem Rumpffzustand l_c mit einer Energie $E = E_c + \hbar\omega$ (E_c relativ zum Vakuumniveau des Spektrometers) emittiert, was durch die Delta-Funktion ausgedrückt wird. Die Emission erfolgt inkohärent für alle Emittor mit Positionen \mathbf{R}_0 und alle magnetischen Quantenzahlen m_c des Ausgangszustands l_c . Für die Summation im Streupfadoperator sind wegen der begrenzten mittleren freien Weglänge der Elektronen im Idealfall nur wenige Atome in der Umgebung des Emittors relevant.

Das eigentliche Problem bei der Durchführung der Mehrfachstreurechnungen sind die Koeffizienten $G_{L'L}$ im Streupfadoperator, weil ihre Berechnung sehr aufwendig ist:

$$G_{L'L}(\mathbf{R}) = 4\pi \sum_{L''} i^{l-l'-l''} h_{l''}^+(KR) Y_{L'}(\mathbf{R}) \int Y_L(\mathbf{k}) Y_{L'}^*(\mathbf{k}) Y_{L''}(\mathbf{k}) d\Omega_{\mathbf{k}} \quad (4.21)$$

Ein Großteil der theoretischen Entwicklungen befasst sich deshalb mit günstigen Näherungen für die $G_{L'L}$. Ein zentraler Gedanke dabei ist, dass zur Beschreibung der Streuung der Elektronenwelle an einem Atom nicht die gesamte Wellenfunktion bekannt sein muss, sondern nur der Anteil in der Nähe des Streuers. Das führt dann dazu, dass man nicht die volle Drehimpulsentwicklung durchzuführen hat.

Ein numerisch besonders effektives Verfahren stellt der Rehr-Albers-Formalismus [151] dar, der auch im MSCD-Paket [65, 152] angewendet wird. Dieses Programmpaket wurde im Rahmen dieser Arbeit für die Mehrfachstreusimulationen benutzt. Eine weitere Methode ist die RAME (Reduced Angular Momentum Expansion) [153–156], die die Wellenfunktion in der Nähe des Streuers ebenfalls nach einer begrenzten Anzahl von Kugelflächenfunktionen entwickelt.

4.1.4 Elektronenbeugung an periodischen Potentialen – Dynamische Theorie

Unter der Voraussetzung eines periodischen Potentials kann die Schrödingergleichung durch einen entsprechenden Ansatz umgeformt werden. Dies führt zu Gleichungen, die das allgemeine Verhalten von Elektronen in periodischen Potentialen beschreiben können.

4.1.4.1 Blochwellentheorie der Elektronenbeugung

Die Schrödingergleichung zur Beschreibung der Elektronenbeugung eines einfallenden Strahls der Form $\exp(i\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{r})$ kann wie folgt geschrieben werden [16]:

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 \Psi(\mathbf{r}) - |e|V(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}) = \frac{\hbar^2 K_0^2}{2m} \Psi(\mathbf{r}) \quad (4.22)$$

Dabei ist m die relativistische Elektronenmasse, V das Potential, und e der Betrag der Elementarladung.

Die Wellenfunktion im Kristall kann außerdem nach Blochwellen mit Wellenvektoren $\mathbf{k}^{(j)}$ entwickelt werden:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_j c_j \exp(i\mathbf{k}^{(j)} \cdot \mathbf{r}) \sum_g C_g^{(j)} \exp(i\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \quad (4.23)$$

Das periodische Kristallpotential wird einer Fourierzerlegung unterzogen, wobei ein skaliertes Potential U^c eingeführt wird, um die Schreibweise übersichtlicher zu gestalten:

$$U^c(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} U_{\mathbf{g}}^c \exp(i\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \quad (4.24)$$

Dabei sind die Koeffizienten $U_{\mathbf{g}}^c$ über die Fourierkoeffizienten des Kristallpotentials V (in Volt) gegeben:

$$|e|V_{\mathbf{g}} = \frac{\hbar^2}{2m} U_{\mathbf{g}}^c \quad (4.25)$$

Zur Beschreibung inelastischer Verluste wird ein zusätzliches imaginäres Kristallpotential U'

eingeführt, mit dem sich das Gesamtpotential U wie folgt zusammensetzt:

$$U(\mathbf{r}) = U^c(\mathbf{r}) + iU'(\mathbf{r}) \quad (4.26)$$

$$U_{\mathbf{g}} = U_{\mathbf{g}}^c + iU'_{\mathbf{g}} \quad (4.27)$$

Die Fourierkoeffizienten $U_{\mathbf{g}}^c$ und $U'_{\mathbf{g}}$ sind dabei die im allgemeinen komplexen Fourierkoeffizienten reeller gitterperiodischer Potentiale. Der konstante Anteil U_0^c des inneren Potentials führt zu einer Änderung des einfallenden Wellenvektors \mathbf{K}_0 im Kristall zu $\mathbf{K}^2 = \mathbf{K}_0^2 + U_0^c$. Der imaginäre Anteil U'_0 ist dann äquivalent zur Einführung einer mittleren freien Weglänge für die einfallenden Elektronen.

Setzt man nun 4.24 und 4.23 mit dem verallgemeinerten Potential 4.26 in die Schrödingergleichung ein, so erhält man nach einem Koeffizientenvergleich die dynamischen Gleichungen von Bethe [157]:

$$[\mathbf{K}^2 - (\mathbf{k}^{(j)} + \mathbf{g})^2]C_{\mathbf{g}}^{(j)} + \sum_{\mathbf{h} \neq \mathbf{g}} U_{\mathbf{g}-\mathbf{h}} C_{\mathbf{h}}^{(j)} = 0 \quad (4.28)$$

welche die Komponenten der Blochwellen, die betrachteten reziproken Gittervektoren und das Kristallpotential miteinander verbinden. Die Lösung dieser Gleichungen (für jede Blochwelle j eine) ergibt zusammen mit den Randbedingungen die Wellenfunktion 4.23. Außer der Periodizität des Kristallpotentials wurden keine weitergehenden Annahmen zur Umformung der Schrödingergleichung gemacht, so dass Gleichung 4.28 für diesen Fall allgemein gültig ist. Sie ist der Ausgangspunkt für verschiedene Theorien der Elektronenbeugung und Bandstrukturrechnung [17] [158, 159].

4.1.4.2 Beschreibung von LEED

Zur Modellierung von LEED wird der oberflächennahe Bereich in einzelne Lagen unterteilt, die translationssymmetrisch sind. Zwischen den Lagen soll ein konstantes Potential herrschen. Das gesamte Wellenfeld wird nach ebenen Wellen entwickelt, die sich in den Festkörper hinein oder aus ihm heraus bewegen. Zwischen der n ten und der $n + 1$ ten Lage im Abstand c hat das Wellenfeld die Form:

$$\sum_{\mathbf{g}} a_{\mathbf{ng}}^+ \exp[iK_{\mathbf{g}}^+ \cdot (r - n\mathbf{c})] + a_{\mathbf{ng}}^- \exp[iK_{\mathbf{g}}^- \cdot (r - n\mathbf{c})] \quad (4.29)$$

wobei die Komponenten der Wellenzahlvektoren $K_{\mathbf{g}}^{\pm}$ durch die Bedingungen der Energie- und Impulserhaltung des einfallenden Strahls bei der Beugung im Festkörper definiert sind. Für jede der so definierten Lagen können Matrizen $t_{\mathbf{gg}'}$ eingeführt werden, die die Transmission ($t_{\mathbf{gg}'}^{++}$, $t_{\mathbf{gg}'}^{--}$) und Reflexion ($t_{\mathbf{gg}'}^{+-}$, $t_{\mathbf{gg}'}^{-+}$) ebener Wellen an dieser Lage beschreiben. Elektronen können dabei von einer ebenen Welle \mathbf{g} in eine andere Welle \mathbf{g}' gebeugt werden. Die komplexen Mehrfachstreuungsprozesse zwischen den Atomen *innerhalb* der einzelnen Lagen werden unter Benutzung des muffin-tin-Modells für die Streupotentiale mit *Kugelwellen* beschrieben. Die Beugung an der Oberfläche wird dann durch die Kombination einer Anzahl von Transfermatrizen berechnet, die die einzelnen Lagen repräsentieren. Für die Mehrfachstreuung der ebenen Wellen zwischen den einzelnen Lagen existieren effektive Näherungsverfahren. Diese nutzen unter an-

derem die Tatsache aus, dass die Streuung in Vorwärtsrichtung intensiviert ist (renormalized forward scattering, RFS [10, 18]).

Auf der Grundlage dieser Algorithmen wurden benutzerfreundliche Programme geschaffen, die dem Experimentator Zugang zu dynamischen Simulationen bieten. Mit der Einführung von TensorLEED [161] können LEED-Experimente für eine große Anzahl von Strukturen effektiv simuliert werden. Dabei werden resultierende Abweichungen von einer Referenzstruktur durch einen Tensor beschrieben. Die zusätzliche Ausnutzung von Symmetrien ermöglicht weitere Geschwindigkeitssteigerungen. Diese Effektivitätssteigerungen ermöglichten die „Automatisierung“ eines großen Anteils der Strukturbestimmung mit LEED [162]. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten LEED-Simulationen wurde das SATLEED-Paket (symmetrized automated tensor LEED) [146] benutzt, in dem die beschriebenen Methoden [10, 19] implementiert sind.

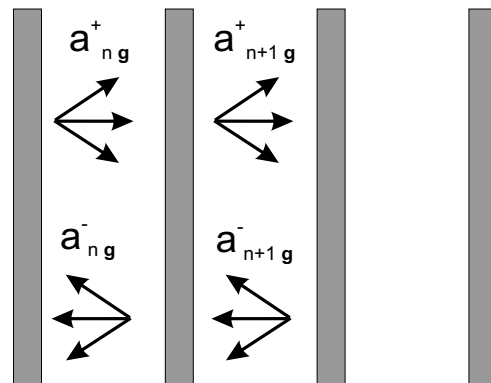


Abb. 4.3: Einteilung des oberflächennahen Bereichs in Lagen, zwischen denen ein konstantes Potential herrscht. An jeder Lage werden Elektronen reflektiert und transmittiert (nach [160]).

4.2 Das Cluster-Einfachstreumodell für die röntgenangeregte Photoelektronenbeugung

4.2.1 Modell

Häufig können Photoelektronenbeugungsmuster in erster Näherung recht erfolgreich durch ein Einfachstreumodell in einem Cluster von Atomen beschrieben werden [49, 50]. Im Clustermodell aus Abschnitt 4.1.3 werden dann also nur Pfade berücksichtigt, die eine einmalige Streuung an einem Atom beinhalten. Dies führt zu einer Einsparung an Rechenzeit, die aber in einigen Fällen auch mit entsprechenden Einbußen in der Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie erkauft wird. Deshalb muss die Anwendbarkeit des Einfachstreumodells für ein bestimmtes Experiment vorher getestet werden.

Eine Prinzipskizze des Einfachstreumodells (Single Scattering Cluster – SSC) ist in Abbildung 4.4 gezeigt. Die Photoelektronen werden von einem Analysator innerhalb seines Akzeptanzbereichs (Raumwinkel Ω) in einer durch die Winkel θ (Polarwinkel) und ϕ (Azimutwinkel) definierten Richtung in Bezug zur Probenoberfläche aufgefangen. Vorher wurden sie durch einfallende Röntgenstrahlung über Photoionisation des Emittieratoms erzeugt. Diese Elektronen können über verschiedene Wege vom Emittier zum Detektor gelangen und dabei auch Energieverluste durch inelastische Prozesse erleiden. Dieser Anteil geht für die elastische Streuung verloren. Am Detektor interferieren dann die elastisch gestreuten Elektronenwellen entsprechend den Phasen- und Amplitudenunterschieden, die sie aufgrund der unterschiedlich zurückgeleg-

Emitter zum Detektor geht und weiterer Wellen, die von den Clusteratomen bei \mathbf{R}_p nur einmal gestreut wurden (Abbildung 4.4):

$$\psi(\mathbf{R}) = \psi_{\text{direkt}}(\mathbf{R}) + \sum_p \psi^{(p)}(\mathbf{R}) \quad (4.32)$$

Es wird angenommen, dass das Potential um ein Atom kugelsymmetrisch ist und für $r \geq a$ verschwindet. Der Endzustand des angeregten Hüllenelektrons wird durch die Drehmoment-Quantenzahlen (l, m) bezeichnet. Die vom Emitter in Richtung $\hat{\mathbf{r}} = \mathbf{r}/r$ ausgehende Welle $\psi_{\text{direkt}}^{lm}(\mathbf{r})$ kann in großer Entfernung als Kombination einer Radialfunktion und der entsprechenden Kugelflächenfunktion geschrieben werden [20]:

$$\psi_{\text{direkt}}^{lm}(\mathbf{r}) = D_l(-i)^{(l+1)} \exp(i\delta_l^0) \frac{\exp(ikr)}{kr} Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}) \quad (4.33)$$

wobei δ_l^0 die Phasenverschiebung der Welle mit Drehimpuls l ist, die vom Emitterpotential her rührt, D_l ist ein Normierungsfaktor.

Um die gestreute Welle $\psi^{(p)}(\mathbf{R})$ zu berechnen, wird angenommen, dass die am Streuer p in \mathbf{R}_p einlaufende Welle $\psi_{\text{direkt}}^{lm}(\mathbf{r})$ als ebene Welle mit der entsprechenden Amplitude $\psi_{\text{direkt}}^{lm}(\mathbf{R}_p)$ und dem Wellenzahlvektor $k\hat{\mathbf{R}}_p$ ($\hat{\mathbf{R}}_p = \mathbf{R}_p/R_p$) geschrieben werden kann. Die gestreute Welle in Richtung θ_p kann dann entsprechend Abschnitt 4.1.1 mit Hilfe des Streufaktors $f_p(\theta_p, k)$ geschrieben werden:

$$\psi^{lm(p)}(\mathbf{R}) = D_l(-i)^{l+1} \exp(i\delta_l^0) \frac{\exp(ikR_p)}{kR_p} Y_{lm}(\hat{\mathbf{R}}_p) f_p(\theta_p, k) \frac{\exp(ik|\mathbf{R} - \mathbf{R}_p|)}{|\mathbf{R} - \mathbf{R}_p|} \quad (4.34)$$

Man beachte, dass $|\mathbf{R} - \mathbf{R}_p|$ wegen der großen Detektor-Entfernung ($R \gg R_p$) vereinfacht werden kann zu

$$|\mathbf{R} - \mathbf{R}_p| \simeq R - \mathbf{R}_p \cdot \hat{\mathbf{R}} = R - R_p \cos \theta_p \quad (4.35)$$

Die volle Wellenfunktion mit den Quantenzahlen (l, m) am Detektorort \mathbf{R} ergibt sich durch einfache Summation der direkten und der gestreuten Wellen nach Gleichung 4.32. Die Emitter-Hüllenelektronen werden bei Photonenanregung mit der Energie $\hbar\omega$ entsprechend den jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeiten aus ihrem Ausgangszustand (l_i, m_i) mit der Energie E_i in Endzustände mit unterschiedlichen Quantenzahlen (l, m) und der Energie $E_f = E_i + \hbar\omega > 0$ übergehen. Diese Übergangswahrscheinlichkeiten werden allgemein durch das Matrixelement $M_{l_i m_i, lm}$ beschrieben. Zu beachten ist, dass bei der XPD der Ausgangszustand durch eine bestimmte Quantenzahl l_i gekennzeichnet ist, aber noch über die dabei möglichen Magnetquantenzahlen m_i summiert werden muss.

Damit kann nun der Elektronenstrom am Detektor unter Weglassung der multiplikativen Konstanten angegeben werden:

$$\frac{dI}{d\Omega} \propto \sum_{m_i} \left\| \sum_{lm} M_{l_i m_i, lm} \left[Y_{lm}(\hat{\mathbf{R}}) + \sum_p \frac{\exp[ikR_p(1 - \cos \theta_p)]}{R_p} f_p(\theta_p, k) Y_{lm}(\hat{\mathbf{R}}_p) \right] \right\|^2 \quad (4.36)$$

Werden die Übergänge der Elektronen in der Dipolnäherung behandelt, so verringert sich die Anzahl der (l, m) -Terme in der obigen Summe erheblich, da dann nur Übergänge mit $l =$

$l_i \pm 1$ und $m = m_i + m_\epsilon$ „erlaubt“ sind (m_ϵ ist die Magnetquantenzahl des Photons). Das Matrixelement in dieser Näherung ergibt sich zu [20]:

$$M_{l_i m_i, l m} \propto \int R_l^*(r) R_{l_i}(r) r^3 dr \quad \cdot \quad \frac{4\pi}{3} \sum_{m_\epsilon=-1}^{+1} Y_{1 m_\epsilon}^*(\hat{\epsilon}) \int Y_{l m}^*(\hat{r}) Y_{1 m_\epsilon}(\hat{r}) Y_{l_i m_i}(\hat{r}) d\Omega \quad (4.37)$$

und ist nur unter den oben erwähnten Auswahlregeln von Null verschieden ($\hat{\epsilon}$ ist der Einheitsvektor in Polarisationsrichtung der einfallenden Röntgenstrahlung; das Radialintegral verwendet die Radialfunktionen des Ausgangs- bzw. Endzustandes).

Die Abschwächung der Elektronen durch das Cluster-Material wird durch die Einführung einer inelastischen mittleren freien Weglänge λ berücksichtigt, die die Amplitude entsprechend des im Material zurückgelegten Weges L proportional zu $\exp(-L/2\lambda)$ verringert. Der Faktor 2 wird eingeführt, um die Näherungswerte der für *Intensitäten* gemessenen inelastischen mittleren freien Weglängen der Materialien zu verwenden.

Die thermische Bewegung der Atome führt zu einem Verlust von Interferenzkontrast und kann durch einen Debye-Waller-Faktor, der von der Temperatur und dem Impulsübertrag auf den Streuer p abhängt, näherungsweise erfasst werden:

$$W_p(T) = \exp[-\Delta k_p^2 \bar{U}_p^2(T)] = \exp[-2k^2(1 - \cos \theta_p) \bar{U}_p^2(T)] \quad (4.38)$$

mit der mittleren quadratischen Auslenkung $\bar{U}_p^2(T)$ des Streuatoms p .

Es hat sich herausgestellt, dass bei Energien über 1keV der Endzustand des Photoelektrons unabhängig von seinem Ausgangszustand gut durch einen p -Zustand ($l = 1$) beschrieben werden kann. Das Matrixelement 4.37 wird in diesem Fall zu einem einfachen Proportionalitätsfaktor und kann fortgelassen werden. Mit diesen zusätzlichen Annahmen kann man Gleichung 4.36 weiter umformen [20] [49]:

$$\begin{aligned} \frac{dI}{d\Omega} &\propto \int_{\hat{\epsilon}} \|\hat{\epsilon} \cdot \hat{\mathbf{R}}\| \exp(-L/2\lambda) \\ &+ \sum_p \frac{\hat{\epsilon} \cdot \hat{\mathbf{R}}_p}{R_p} |f_p(\theta_p, k)| W_p(T) \exp(-L_p/2\lambda) \exp\{i[kR_p(1 - \cos \theta_p) + \phi_p(\theta_p)]\} \|^2 d\hat{\epsilon} \\ &+ \sum_p \int_{\hat{\epsilon}} \left(\frac{\hat{\epsilon} \cdot \hat{\mathbf{R}}_p}{R_p} \right)^2 |f_p(\theta_p, k)|^2 (1 - W_p(T)^2) \exp(-L_p/\lambda) d\hat{\epsilon} \end{aligned} \quad (4.39)$$

Dabei ermöglicht die Integration über $\hat{\epsilon}$ die Betrachtung unpolarisierter Strahlung konventioneller Labor-Röntgenquellen. $\phi_p(\theta_p)$ ist die Phase des komplexen Streufaktors $f_p(\theta_p, k)$. Die zweite Summe dient zur Korrektur des ersten Terms, weil der Debye-Waller-Faktor nicht auf Produkte einer Welle mit sich selbst wirken soll, da dann ja gar keine Interferenzabschwächung eintritt. Für alle Emittoren wird dann die Intensität nach Gleichung 4.39 summiert.

Gleichung 4.39 ist die Grundlage des Programms CALCMAT, das im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde und zur Simulation von Photoelektronenbeugungsmustern genutzt werden kann. Die Streuung von Kugelwellen ist darin über den verallgemeinerten Streufaktor aus Gleichung 4.5 berücksichtigt.

4.2.2 Parameter

4.2.2.1 Inelastische mittlere freie Weglänge

Die inelastische mittlere freie Weglänge (inelastic mean free path, IMFP) der Elektronen im Kristall bestimmt wesentlich die zur Konvergenz einer Simulation notwendige Clustergröße. Der Parameter λ des SSC-Modells, der die Abschwächung der Elektronenintensität mit zunehmender Weglänge im Festkörper beschreibt, kann mit Hilfe der Formel von Tanuma-Powell-Penn [163] abgeschätzt werden:

$$E_p = 28.8 \sqrt{\frac{\rho N_V}{M}}$$

$$\lambda(E) = \frac{E}{E_p^2 \beta \ln(\gamma E)} \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{1.05}{\sqrt{E_p^2 + E_g^2}} - 0.0252 + 0.00081\rho \quad (4.40)$$

$$\gamma = 0.151\rho^{-0.49}$$

Dabei ergibt sich λ in Å, E_p ist die Plasmonenenergie, die zusammen mit den Parametern β und γ benötigt wird. N_V ist die Gesamtzahl der Valenzelektronen pro Atom oder Molekül, M die Molare Masse in g/mol , ρ ist die Dichte des Stoffes in g/cm^3 und E_g die Gap-Energie in eV.

Weiterhin existieren einige empirische Formeln zur Abschätzung der IMFP. Die universelle Formel von Seah und Dench [21] für Elemente lautet:

$$\lambda/a = \frac{538}{E^2} + 0.41 \cdot \sqrt{aE} \quad \text{mit} \quad a = \left(\frac{M}{\rho N_A}\right)^{1/3} \quad (4.41)$$

wobei die Energie E in eV zu benutzen ist und der Parameter a die Dicke einer Monolage des Stoffes (in nm) bezeichnet, mit der Molaren Masse M , der Avogadrokonstante N_A und der Dichte ρ . Der Faktor für die Standardabweichung beträgt dabei 1.36 [21].

Die Werte der IMFP, die aus diesen Formeln gewonnen werden, weichen teilweise voneinander ab, da unterschiedliche theoretische oder experimentelle Methoden zur Herleitung und Messung verwendet werden. Trotzdem liefern alle Formeln gute Startwerte für die genauere Ermittlung der besten SSC-IMFP im Rahmen einer Fitprozedur, bei der das theoretische Modell dem Experiment so gut wie möglich angepasst wird.

Im Rahmen des SSC-Modells ist bekannt, dass die üblicherweise angegebenen mittleren freien Weglängen reduziert werden müssen, um eine optimale Übereinstimmung des Experiments mit der Theorie zu erreichen. In [49] wird eine Reduktion um einen Faktor 1.5 genannt. Ähnliche Reduktionen wurden bei meinen SiC-Simulationen nötig (siehe Kapitel 6.1.1.1).

4.2.2.2 Debye-Waller-Faktor

Der Debye-Waller-Faktor zur Berücksichtigung der thermischen Bewegung der Streuer kann zum Beispiel im Rahmen des Debye-Modells für die Gitterschwingungen abgeschätzt werden [19]. Für eine große Anzahl von Materialien können die Debye-Waller-Faktoren aus Ta-

bellens entnommen werden [22]. Der Einfluss des Debye-Waller-Faktors ist geringer, wenn die Vorwärtsstreuung dominiert, da wegen der geringen Winkelablenkung bei der Streuung in dieser Richtung $W_p(T) \approx 1$ folgt (Formel 4.38).

4.2.2.3 Winkelauflösung

Je mehr Streuer kohärent interferieren können, um so schärfer werden die beobachteten Strukturen im Beugungsmuster. Deshalb sind mit wachsender Clustergröße auch entsprechend feinere Strukturen zu erwarten. Umgekehrt führt eine begrenzte Winkelauflösung im Experiment dazu, dass zur Simulation entsprechend kleinere Cluster verwendet werden können. Im Programm wird die Winkelauflösung durch eine Summation über eine Anzahl von Einfallrichtungen simuliert, welche vom Detektor überdeckt werden. Eine getrennte Anpassung der azimuthalen und polaren Auflösung ist möglich, um die verschiedenartigen Blenden im Analysator zu berücksichtigen.

4.2.2.4 Inneres Potential

Um aus dem Festkörper austreten zu können, muss das Photoelektron eine bestimmte Potentialbarriere überwinden. Bei entsprechend niedrigeren Energien und flachen Austrittswinkeln ist eine Korrektur wegen der Brechung der austretenden Elektronenwellen aufgrund des inneren Potentials V_0 notwendig. Dabei ändert sich der Polarwinkel der austretenden Elektronen:

$$\sin \theta_{sample} = \left[\frac{E_{kin} + V_0}{E_{kin}} \right]^{1/2} \sin \theta_{vacuum} \quad (4.42)$$

Werte für das innere Potential liegen im Bereich von 5-15eV bezogen auf das Vakuumniveau der Probe. Das innere Potential wird in Rechnungen als anpassbarer Parameter behandelt, da Oberflächeneffekte dieses Potential modifizieren können [19].

4.2.2.5 Empirische Reduktion der Streuamplitude

Bei Einfachstreurechnungen wird die Intensität in Richtungen, die viele Atome enthalten, sehr überschätzt. Durch Mehrfachstreuungseffekte können sich nämlich die bei der Streuung auftretenden Phasenverschiebungen aufsummieren und zu einer destruktiven Interferenz führen. Außerdem werden die Photoelektronen durch mehrfache Streuungen mit großer Wahrscheinlichkeit aus ihrer ursprünglichen Richtung abgelenkt. Dies alles bewirkt im Experiment eine wesentlich geringere Intensität in solch dicht besetzten Richtungen, als durch SSC-Rechnungen vorhergesagt wird. Dieser Effekt kann durch eine empirische Reduktion der Streuamplituden vermindert werden [164]. Diese empirischen Reduktionen wurde dann auch in den Simulationen zur besseren Anpassung an das Experiment eingesetzt.

4.3 Das Blochwellenmodell für Elektronenchannellingmuster

Dem Weg von B nach A in Abb. 4.2 entspricht die Situation eines einfallenden Elektronenstrahls, dessen Beugungserscheinungen über einen am Ort A lokalisierten Prozess beobachtet werden. Diese Situation liegt bei den Elektronenchannellingmustern vor.

Die Entstehung der Elektronenchannellingmuster wird in zwei Schritten modelliert: zuerst wird die Beugung des einfallenden Strahls berechnet. Diese führt zu einer Modulation der Elektronendichte im Kristall. In einem zweiten Schritt wechselwirken die gebeugten Elektronen dann mit dem Streupotential für die *quasielastische* Rückstreuung. Diese ist im wesentlichen Rutherfordstreuung mit großen Streuwinkeln, weshalb das entsprechende Streupotential in der Nähe der Positionen der Atomkerne am stärksten ist. Erhöhte Rückstreuung tritt dann auf, wenn die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der gebeugten Elektronen in der Nähe der Atomkerne hoch ist.

4.3.1 Anschauliche Interpretation

Auch im Rahmen des Blochwellenmodells können die grundlegenden Prinzipien, die zu dem beobachteten Wechsel der rückgestreuten Intensität führen, anschaulich interpretiert werden. In Abb. 4.5 ist eine experimentelle Situation gezeigt, in der sich der einfallende Strahl in der Nähe der Bragg-Reflexion an einem Satz Gitterebenen befinden soll. Für die Ausbildung des Wellenfeldes im Kristall sollen nur der einfallende Strahl und der an der Gitterebene reflektierte Strahl von Bedeutung sein. Dieser sogenannte Zweistrahlfall kann mit den Formeln aus Abschnitt 4.1.4.1 analytisch gelöst werden [17]. Dabei zeigt sich, dass sich das Wellenfeld aus der Überlagerung zweier Blochwellen zusammensetzen lässt. Bei Einfallswinkeln, die größer oder kleiner als der Braggwinkel sind, wird im wesentlichen nur eine einzige der beiden möglichen Blochwellen stark angeregt. Bei kleineren Einfallswinkeln besitzt die hauptsächlich angeregte Blochwelle Maxima in der Nähe der Atompositionen. Ist der Einfallswinkel größer als der Braggwinkel, so dominiert eine

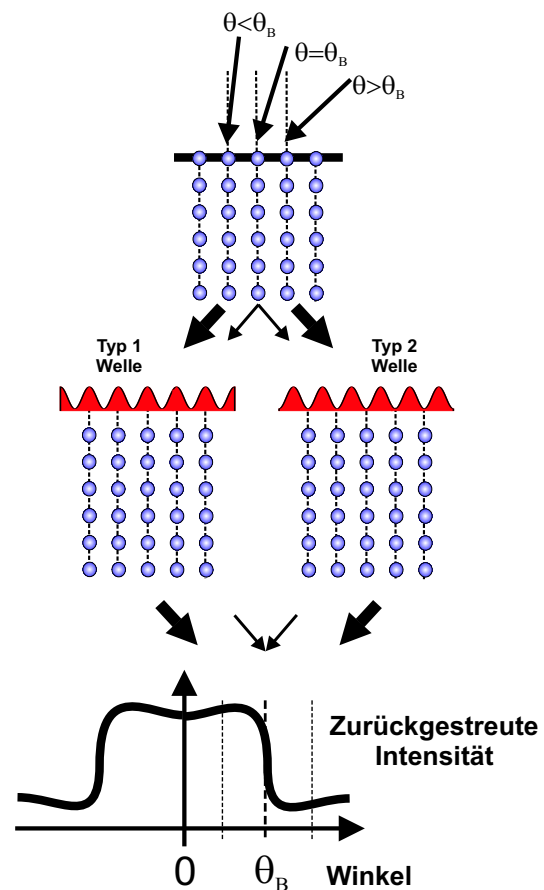


Abb. 4.5: Blochwellen, die in der Nähe der Bragg-Reflexion angeregt werden und ihr Bezug zur Kristallstruktur

Blochwelle, die Minima an den Atompositionen besitzt. Da die quasielastische Rückstreuung ihre Quellen an den Atompositionen besitzt, erhält man also bei Winkeln, die kleiner als der

Braggwinkel sind, auch eine erhöhte Rückstreuung. Durch die Beugung kommen in diesem Falle mehr Elektronen in die Nähe der Atomkerne und können zurückgestreut werden. Dies ist im unteren Teil von Abb. 4.5 gezeigt. Dort wird auch klar, wie sich ein sogenanntes Kikuchi-Band mit der Breite des doppelten Braggwinkels durch die Reflexion auf der anderen Seite der Gitterebene ausbildet.

4.3.2 Beugung des einfallenden Strahls

Wegen der höheren Eindringtiefe der benutzten Elektronen sind Elektronenchannellingmuster im wesentlichen von der Volumenstruktur abhängig und können mit der Annahme eines dreidimensional periodischen Kristalls unter Vernachlässigung von Oberflächeneffekten modelliert werden. Die Wellenfunktion der gebeugten Elektronen im Kristall kann dann nach Blochwellen entwickelt werden (Abschnitt 4.1.4.1).

Gleichung 4.28 kann im Falle von hohen Energien weiteren Vereinfachungen unterzogen werden. Zunächst schreibt man den Wellenzahlvektor der Blochwelle j als Kombination aus dem einfallenden Strahl im Kristall und einer Komponente in Richtung der Oberflächennormale \mathbf{n} : $\mathbf{k}^{(j)} = \mathbf{K} + \gamma^j \mathbf{n}$. Mit Hilfe dieser Definition kann man Gleichung 4.28 weiter umformen zu

$$\left[2KS_g - 2(\mathbf{K} + \mathbf{g}) \cdot \mathbf{n} \gamma^{(j)} - \gamma^{(j)2} \right] C_{\mathbf{g}}^{(j)} + \sum_{\mathbf{h}} U_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^c C_{\mathbf{h}}^{(j)} = 0 \quad (4.43)$$

mit

$$2KS_g = K^2 - (\mathbf{K} + \mathbf{g})^2 \quad (4.44)$$

Gleichung 4.43 beinhaltet vorwärts- und zurückgestreute Wellen. Der Anteil elastisch zurückgestreuter Wellen ist aber wegen der Dominanz der Vorwärtsstreuung so gering, dass er bei hohen Energien meistens vernachlässigt werden kann¹. Dies bedeutet, dass man in Formel 4.43 die Näherung $\gamma \ll K_n = \mathbf{K} \cdot \mathbf{n}$ anwenden und zusätzlich die γ^2 -Terme vernachlässigen kann [16]. Mit der Definition der Eigenvektor-Elemente $B_{\mathbf{g}}^{(j)}$

$$B_{\mathbf{g}}^{(j)} = \left(1 + \frac{g_n}{K_n} \right)^{1/2} C_{\mathbf{g}}^{(j)} \quad (4.45)$$

kann man Gleichung 4.43 letztendlich in die Form eines Eigenwertproblems bringen:

$$\frac{2KS_g B_{\mathbf{g}}^{(j)}}{(1 + g_n/K_n)} + \sum_{\mathbf{h}} \frac{B_{\mathbf{h}}^{(j)} U_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}}{\sqrt{1 + g_n/K_n} \sqrt{1 + h_n/K_n}} = 2K_n \gamma^{(j)} B_{\mathbf{g}}^{(j)} \quad (4.46)$$

Diese Gleichung wird im von Zuo *et al.* [165] veröffentlichten Programm TCBED gelöst, welches zur Berechnung der Blochwellen genutzt wurde. Darin werden die Eigenwerte einer komplexen Matrix von der Dimension der Anzahl benutzten Reflexe bestimmt. Zusätzlich zu den Eigenwerten γ^j und den Eigenvektoren $C_{\mathbf{g}}^{(j)}$ ist es noch nötig, die Anregungskoeffizienten c_j zu bestimmen, um die Wellenfunktion 4.23 der Elektronen eindeutig festzulegen. Es zeigt sich, dass die Randbedingungen bei Einfall einer einzelnen ebenen Welle diese Koeffizienten c_j als die Elemente C_j^{-1} der ersten Spalte der zu $C_{\mathbf{g}}^j$ inversen Matrix (Spalte j , Zeile g) festlegen [16].

¹Ausnahmen bilden RHEED und LEED, wo diese *elastisch* rückgestreuten Wellen eine entscheidende Rolle spielen [159]

An dieser Stelle ist damit die Wellenfunktion 4.23 vollständig bekannt. Das Vorhandensein von Absorption kann phänomenologisch durch einen komplexen Anteil im Wellenvektor und ein entsprechendes komplexes Potential beschrieben werden:

$$\mathbf{k}^{(j)} = \mathbf{K} + (\gamma^j + i\mu^j)\mathbf{n} = \mathbf{K} + \lambda^j\mathbf{n} \quad (4.47)$$

In diesem Falle ergeben sich in einer analogen Ableitung komplexe Eigenwerte λ^j . Numerisch ist es manchmal von Vorteil, wenn wie oben zunächst die Absorption vernachlässigt wird. Die Absorptionskoeffizienten μ^j können dann über eine störungstheoretische Formel aus den Koeffizienten des Absorptionspotentials berechnet werden (siehe Abschnitt 4.3.4.3).

4.3.3 Berechnung der Rückstreuung

Die Wellenfunktion wechselwirkt nun mit dem Streupotential für die quasielastische Rückstreuung. Dabei kann man einmal annehmen, dass jede Blochwelle unabhängig von den anderen zurückgestreut wird (independent Bloch wave model) oder aber man betrachtet den allgemeinen Fall mit Interferenzen zwischen den Blochwellen (dependent Bloch wave model). Im wesentlichen läuft die Berechnung der Rückstreuung darauf hinaus, die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen am Ort der Atomkerne zu berechnen und entsprechend der Kernladungszahl und den thermischen Schwingungen der Kerne zu skalieren, um die elementabhängige Stärke der Streuung zu beschreiben.

4.3.3.1 Aufenthaltswahrscheinlichkeit und lokalisierte Streuereignisse

Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen im Kristall kann durch Bildung von $\psi\psi^*$ aus Gleichung 4.23 ermittelt werden [166]. Für die Wechselwirkung dieser Elektronen mit Potentialen, die beliebige inelastische Prozesse beschreiben können, werden in [167, 168] allgemeine Ausdrücke abgeleitet. Für den Fall der Rückstreuung durch Phononen ergibt sich nach Rossouw [169] für den von Beugungseffekten abhängigen Anteil (bei Benutzung eines Detektors, der alle von der Probe zurückgestreuten Elektronen aufammelt):

$$I_A \approx A \sum_n Z_n^2 \sum_{ij} B^{ij}(t) \sum_{\mathbf{g}, \mathbf{h}} C_{\mathbf{g}}^{(i)} C_{\mathbf{h}}^{(j)*} \exp(-M_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^n) \exp[i(\mathbf{g} - \mathbf{h}) \cdot \mathbf{r}_n] \quad (4.48)$$

mit rückstreuenden Atomen bei \mathbf{r}_n , einer Proportionalitätskonstante A und einem tiefenintegrierten Interferenzterm $B^{ij}(t)$ der Blochwellen i und j :

$$B^{ij}(t) = c_i c_j \frac{\exp[i(\lambda^i - \lambda^{j*})t] - 1}{i(\lambda^i - \lambda^{j*})t} \quad (4.49)$$

Ähnliche Ausdrücke wurden von Marthinsen [170] und Reimer [171] gefunden. Im wesentlichen bedeutet Gleichung 4.48, dass das Rückstreupotential aus Deltafunktionen am Ort der Kerne besteht (Fourierdarstellung im $\exp[i(\mathbf{g} - \mathbf{h}) \cdot \mathbf{r}_n]$ -Term), die mit Debye-Waller-Faktor $\exp(-M_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^n)$ und Ordnungszahl Z_n^2 gewichtet sind. Für Rechnungen mit vielen Reflexen wird die exakte Auswertung von Gleichung 4.48 wegen der Anzahl der Summen schnell zum Problem und es müssen numerische Näherungen gemacht werden. In [169] wird dazu vorgeschlagen, die Blochwellen so umzuordnen, dass die am stärksten angeregten Blochwellen zuerst

summiert werden und dann diese Summe nur bis zu einem bestimmten Prozentsatz durchzuführen, bis Konvergenz erreicht ist. Diese Vorgehensweise wurde hier ebenfalls benutzt, mit typischen Abbruchbedingungen von 98% bis 99.5% der insgesamt in den Blochwellen vorhandenen Intensität. Es bleibt zu erwähnen, dass das Modell von Rossouw keine Annahmen über die Mehrfachstreuungsprozesse der rückgestreuten Elektronen auf ihrem Weg aus dem Kristall heraus macht (siehe 4.3.3.2).

4.3.3.2 Unabhängige Blochwellen und Forward-Backward-Approximation

Betrachtet man jede Blochwelle unabhängig von den anderen, so kann man die Terme mit $i \neq j$ in den B^{ij} aus Gleichung 4.48 vernachlässigen und einen Rückstreukoeffizienten p_j definieren [172,173], welcher den Anteil rückgestreuter Elektronen aus der Blochwelle j pro Einheitsdicke angibt :

$$p_j = \frac{\pi}{\Omega} \left[\frac{e^2 m \lambda^2}{4\pi \epsilon_0 h^2} \right]^2 \sum_n Z_n^2 \sum_{\mathbf{g}, \mathbf{h}} C_g^{(j)} C_h^{(j)*} \exp(-M_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^n) \exp[i(\mathbf{g} - \mathbf{h}) \cdot \mathbf{r}_n] \quad (4.50)$$

wobei Ω das Volumen der Einheitszelle ist, die Streuer mit der Kernladungszahl Z_n an den Positionen \mathbf{r}_n enthält. $M_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^n$ ist der Debye-Waller-Faktor des Atoms n für den Reflex $(\mathbf{g} - \mathbf{h})$, λ ist die Wellenlänge der Elektronen.

Die rückgestreuten Elektronen können auf ihrem Weg aus dem Kristall durch weitere Streuprozesse beeinflusst werden. In [174] wurde gezeigt, wie dies durch eine Transportgleichung modelliert werden kann. In [175] wird ein ähnlicher Ansatz verfolgt, während in [176] Monte-Carlo-Simulationen genutzt werden. Ein vereinfachter Ansatz besteht in der „Forward-Backward-Approximation“ (FBA) [173, 177], bei der die rückgestreuten Elektronen in zwei Gruppen eingeteilt werden, zwischen denen eine Umverteilung stattfinden kann. Diese zwei Gruppen bestehen aus Elektronen, die sich in den Kristall hinein oder aus ihm hinaus bewegen. Durch Streuprozesse können die Elektronen zwischen diesen beiden Gruppen wechseln. Beugungseffekte auf dem Weg nach draußen werden nicht betrachtet, weil der Detektor entsprechend winkelintegrierend sein soll. Die rückgestreute Intensität ergibt sich mit diesem Ansatz zu [173]:

$$I_B = \frac{1}{1 + p_0 t} \left[p_0 t + \sum_j I_j(0) (p_j - p_0) \frac{1 - \exp(-2\mu^j t)}{2\mu^j t} \right] \quad (4.51)$$

mit $p_0 = \sum_j p_j / n$, n ist die Anzahl der Blochwellen, und $I_j(0) = |C_0^j|^2$ für nahezu senkrechten Einfall. Die Dicke t wird normalerweise als 0.4 mal der Bethe-Elektronenreichweite [9] im Kristall angenommen [173]. Die Modelle der Rückstreuung nach Gleichung 4.48 und 4.51 wurden von mir in das Programm von Zuo *et al.* [165] integriert und als Programm ECP für die Simulationen im Ergebnisteil benutzt. Zu Testzwecken wurden einige Ergebnisse dieses Programms mit denen von Marthinsen in [178] veröffentlichten verglichen.

4.3.4 Parameter

4.3.4.1 Elastische Streupotentiale

Die Faktoren $U_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}$ in Gleichung 4.46 ergeben sich aus den Fourierkoeffizienten des Kristallpotentials nach Gleichung 4.25. Das Kristallpotential für die elastische Streuung kann in guter Näherung aus kugelsymmetrischen Potentialen der einzelnen Atome zusammengesetzt werden [16]. Diese gehen in die Definition des „atomaren Formfaktors“ für Elektronen ein, der in Zusammenhang mit der Bornschen Näherung [12] für die Streuung bei einer Impulsänderung $\mathbf{g} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ steht und üblicherweise in Abhängigkeit von der Variable s geschrieben wird²:

$$f^e(s) = \int V(\mathbf{r}) \exp(-4\pi i s \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (4.52)$$

mit $s = \sin \theta_B / \lambda = |\mathbf{g}|/2$. Die Fourierkoeffizienten des Kristallpotentials ergeben sich nun aus einer Summation der f^e über die Atome einer Einheitszelle [16]:

$$V_{\mathbf{g}} = \frac{1}{\Omega} \sum_i f^e(s) \exp(-i\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \quad (4.53)$$

mit dem Volumen Ω der Einheitszelle. Daraus können dann die $U_{\mathbf{g}}$ berechnet werden. Der Nutzen von Gleichung 4.53 liegt darin, dass für viele Atome Parametrisierungen vorliegen, die zur Berechnung der f^e genutzt werden können. Die atomaren Potentiale in Gleichung 4.52 können zum Beispiel mit der Hartree-Fock-Methode berechnet werden. Auf dieser Grundlage haben Doyle und Turner [179] Parameter für Entwicklungen der f^e nach Gaußfunktionen gegeben, aus denen die $U_{\mathbf{g}}$ gebildet werden können. Diese Parametrisierung wird auch im Programm von Zuo angewendet [165].

4.3.4.2 Debye-Waller-Faktor

Die thermische Bewegung der Kristallatome führt zu einer Verschmierung ihres Potentials über einen größeren Bereich. Mit einer mittleren quadratischen Auslenkung $\langle x^2 \rangle$ in Richtung der Impulsänderung \mathbf{g} muss der Streufaktor f^e dann mit dem Debye-Waller-Faktor $\exp(-M_{\mathbf{g}})$ multipliziert werden:

$$f^e \rightarrow \exp(-\langle x^2 \rangle \mathbf{g}^2 / 2) f^e(s) = \exp(-M_{\mathbf{g}}) f^e(s) \quad (4.54)$$

Für viele Elemente und Verbindungen sind die Debye-Waller-Faktoren tabuliert [22]. Eine temperaturabhängige Parametrisierung findet man in [180].

4.3.4.3 Absorption

Neben der elastischen Streuung können die einfallenden Elektronen auch Energieverluste durch inelastische Prozesse erleiden. Diese Elektronen verschwinden dann effektiv aus der Gruppe der Elektronen mit der ursprünglichen Energie. Dieser Vorgang kann durch die Einführung eines imaginären Anteils U' im Kristallpotential modelliert werden (vgl. Gl. 4.26) [16] [181].

²Für weitere Konventionen siehe [16]

Dementsprechend erhält auch der Streufaktor f^e einen imaginären Anteil:

$$f^e(s) = f_{re}^e(s) + i f_{im}^e(s) \quad (4.55)$$

Der imaginäre Anteil des Streufaktors $f_{im}^e(s)$ kann analog der Transformation in Gleichung 4.52 einem effektiven Potential für inelastische Prozesse zugeordnet werden. Aufgrund der Eigenschaften der Fouriertransformation tragen dann räumlich nicht lokalisierte Prozesse nur bei $s \approx 0$ bei, während auf kleine Raumbereiche lokalisierte Prozesse auch bei großen s noch Beiträge liefern.

Die wichtigsten Mechanismen, die für inelastische Verluste bei den hier betrachteten Energien verantwortlich sind, liegen in der Anregung von Plasmonen, der Anregung von Rumpfelektronen und der Anregung von Gitterschwingungen (Phononen) [9] [181]. Der Beitrag der Prozesse unterscheidet sich je nach der betrachteten Impulsänderung s bei der Streuung. Bei großen Streuwinkeln dominiert die Streuung aufgrund von Phononen, die der wesentlichste Beitrag zu $f_{im}^e(s)$ bei $s > 0$ sind [182, 183]. Die entsprechenden Energieverluste liegen unter 1eV. Damit sind diese Elektronen experimentell in den meisten Fällen nicht von den elastisch gestreuten Elektronen separierbar (*quasielastische* Streuung). Explizite Werte für $f_{im}^e(s)$ wurden unter Annahme des Einstein-Modells für die Gitterschwingungen und isotroper Debye-Waller-Faktoren [172] berechnet [184–186]. Für die Simulationen im Rahmen dieser Arbeit wurde die ATOM-Subroutine aus [184] zur Berechnung der $f_{im}^e(s)$ benutzt.

Die Absorptionskoeffizienten μ_j können in geeigneten Fällen störungstheoretisch aus den Fourierkoeffizienten U'_{h-g} des imaginären Potentialanteils berechnet werden [166, 187]:

$$2k\mu_j = U'_0 + \sum_{h \neq g} U'_{h-g} C_h^{j*} C_g^j \quad (4.56)$$

Die oben erwähnte ATOM-Subroutine aus [184] bietet eine Möglichkeit, die U'_{h-g} zu ermitteln.

4.4 Kikuchi-Band-Modell der XPD

Eine allgemeine Theorie für die Beugung von Strahlung, die von Punktquellen im Kristall ausgeht, wurde von DeWames *et al.* aufgestellt [188, 189]. Goldberg *et al.* haben dieses Modell auf den Fall der XPD angewendet [190]. Dabei wurde jedoch nur der Zweistrahlfall untersucht, der nur die Form eines einzelnen Kikuchi-Bands unter Vernachlässigung der Wechselwirkung mehrerer reflektierender Ebenen beschreibt. Dynamische Simulationen vollständiger Beugungsmuster unter Berücksichtigung einer beliebigen Anzahl von Reflexen sind meines Wissens bisher nicht erfolgt.

Das Kikuchi-Band-Modell der Photoelektronenbeugung beruht auf den theoretischen Grundlagen der Elektronenbeugung an Netzebenen aus Abschnitt 4.1.4.1. Zur Beschreibung der Beugung der von einer Punktquelle ausgehenden Photoelektronen wird das Reziprozitätsprinzip angewendet. Damit kann das Problem so umformuliert werden, dass die Elektronenintensität am betrachteten Emitteratom nach Beugung einer *einfallenden ebenen* Welle gesucht ist. Man erkennt, dass dies genau dem Modell für die Elektronenchannellingmuster entspricht, wenn

man statt der Erzeugung von quasielastisch rückgestreuten Elektronen die Erzeugung von Photoelektronen betrachtet. Die Formeln aus den Abschnitten 4.3.2 und 4.3.3.1 sollten also direkt zur Simulation von Photoelektronenbeugungsmustern geeignet sein, wenn man beachtet, dass wegen der chemischen Selektivität der XPD nur Atome einer festgelegten Sorte zum Beugungsmuster beitragen. Die Z-Abhängigkeit in Formel 4.48 kann also entfallen:

$$I_{XPD} \propto \sum_n \sum_{ij} B^{ij}(t) \sum_{\mathbf{g}, \mathbf{h}} C_{\mathbf{g}}^{(i)} C_{\mathbf{h}}^{(j)*} \exp(-M_{\mathbf{g}-\mathbf{h}}^n) \exp[i(\mathbf{g} - \mathbf{h}) \cdot \mathbf{r}_n] \quad (4.57)$$

wobei n über alle Emittieratome der Einheitszelle läuft. Die Beschränkungen dieses Ansatzes liegen darin, dass die Winkelabhängigkeit der Photoemission vernachlässigt wird und dass bei der Beugung der einfallenden ebenen Welle nur solche Blochwellen betrachtet werden, die sich in den Kristall hinein bewegen (Abschnitt 4.3.2, bei der XPD entspricht dies dann wegen des Reziprozitätsprinzips Wellen aus dem Kristall *heraus*). Als Vorteil dieses Modells für die Substratmission ist die Tiefenintegration in den Termen $B^{ij}(t)$ zu sehen, die dazu führt, dass nur die Emitter *einer* Einheitszelle betrachtet werden müssen. In Abschnitt 6.3.1 wird gezeigt, dass Formel 4.57 tatsächlich die Simulation von vollständigen XPD-Mustern für SiC und AlN ermöglicht und die Erklärung einiger grundlegender Effekte im Vergleich mit dem SSC-Modell erlaubt.

4.5 Methoden und Modelle - Grenzen und Gemeinsamkeiten

Die oben vorgestellten theoretischen Modelle sollen dazu dienen, Elektronenbeugungseffekte in dünnen Schichten zu beschreiben. Dabei werden in dieser Arbeit zwei Ansätze verfolgt, die kristalline Schicht zu modellieren. Wegen der geringen Wechselwirkungslänge von niederenergetischen Elektronen ist es möglich, den Kristallbereich, der von Interesse ist, als eine Ansammlung von Atomen im Ortsraum zu betrachten. Beugungseffekte hochenergetischer Elektronen lassen sich hingegen besser durch die Annahme einer dreidimensionalen Periodizität und der Zerlegung des Kristalls in reflektierende Netzebenenscharen - also im reziproken Raum - beschreiben. Clustermodelle haben sich bis jetzt bei der Beschreibung der Photoelektronen-

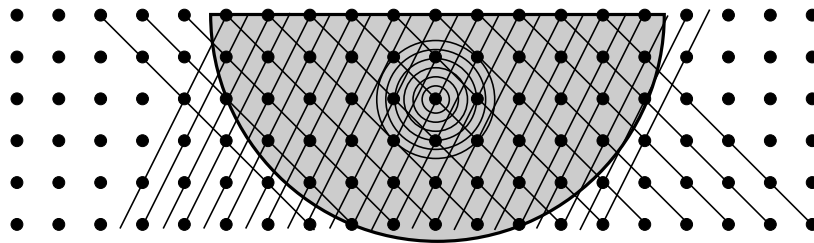


Abb. 4.6: Zur Beschreibung von Beugungseffekten kann der interessierende Kristallbereich als Cluster von Atomen betrachtet werden, oder er wird in Netzebenenscharen aufgeteilt.

beugung, der Auger-Elektronenbeugung und der quasielastischen Beugung mittlereenergetischer Elektronen (MEED) [191–193] erfolgreich gezeigt. Häufig ist dabei eine einfache Interpretation im Rahmen von Vorwärtsstreurichtungen möglich. Dreidimensionale Blochwellenmodelle

werden zur Beschreibung von Elektronenchannellingmustern, der konvergenten Elektronenbeugung [16], der Erzeugung von Röntgenstrahlen nach Beugung des einfallenden Strahls (atom location by channeling-enhanced microanalysis, ALCHEMI, [167]) und von Beugungseffekten bei der Elektronenverlustspektroskopie [194] eingesetzt. Die Interpretation orientiert sich an der Bragg-Reflexion an Netzebenen und den dabei entstehenden Kikuchi-Linien und ihrer Analoga.

Steigt die Energie der Elektronen, so müssen die zur Beschreibung ihrer Beugungseffekte nötigen Cluster im Allgemeinen auch größer werden. Wie in Abbildung 4.6 schematisch gezeigt ist, enthält ein großer Cluster eine wachsende Anzahl von Elementarzellen des Kristalls. Somit spiegelt sich in einem größer werdenden Cluster die Kristallsymmetrie immer ausgeprägter wieder, so dass die Beschreibung als dreidimensionale periodische Anordnung immer adäquater wird. Es muss also auch einen Übergangsbereich geben, in dem Elektronenbeugungseffekte sowohl durch das Clustermodell, als auch durch das Kristallmodell effektiv modellierbar sind.

Dies zeigt sich zum Beispiel in der erfolgreichen Interpretation von XPD-Mustern im Rahmen der sogenannten „Kikuchi-Band-Theorie“, durch die die Breite der charakteristischen Bänder erklärt werden kann, die oftmals bei der Substrat-XPD auftreten [190, 195, 196]. Diese Breite ist zweimal so groß wie der Braggwinkel der Netzebenen, die die Photoelektronen reflektiert. Die Äquivalenz von Cluster-Modell und Kikuchi-Band-Theorie wurde durch Cluster-Simulationen gezeigt, welche die Entstehung der Kikuchi-Bänder korrekt widerspiegeln. Der umgekehrte Weg, vollständige Beugungsmuster im Rahmen der Kikuchi-Band-Theorie mit vielen gleichzeitig reflektierenden Netzebenen zu simulieren, wurde meines Wissens bis jetzt noch nicht beschritten.

In Abschnitt 4.4 wurde dazu durch Vergleich mit den Elektronenchannellingmustern ein Modell vorgestellt, das eben diese Art von Simulationen ermöglicht. Es beruht auf der Anwendung des Reziprozitätsprinzips und benutzt einen Algorithmus für die Beugung einer *einfallenden* ebenen Welle, um die Beugungseffekte einer Punktquelle von Photoelektronen in einem Kristall wiederzugeben.

Spezielle Effekte, wie zum Beispiel das elementabhängige Verschwinden von Kikuchi-Linien [197–199] in XPD-Mustern, sind mit einem solchen Modell einer direkteren Beschreibung zugänglich. Zwar können auch SSC-Simulationen diese Effekte erklären [200], die Kikuchi-Linien sind darin aber als sekundäre Phänomene zu betrachten, die sich durch das Zusammenwirken einer großen Anzahl von periodisch angeordneten Streuern ergeben. Als Einzelbausteine in der Theorie sind die Kikuchi-Linien in den Clustermodellen nicht greifbar. Nutzt man die Voraussetzung der Periodizität wie oben beschrieben bereits bei der Formulierung der Theorie, so treten die Kikuchi-Linien beziehungsweise die dazugehörigen Gitterebenen direkt in den Modellen auf. Damit sind Untersuchungen möglich, die sich direkt auf einzelne oder auf eine Gruppe von Kikuchi-Linien stützen. Dies ist mit Cluster-Simulationen nicht möglich.

Ähnliche Modelle, die wie das in Abschnitt 4.4 benutzte auf dem Reziprozitätsprinzip beru-

hen, verwenden spezielle Formen von Wellenfunktionen aus den Bereichen RHEED [201, 202] und LEED [203, 204] und haben die prinzipielle Anwendbarkeit dieses Prinzips für die Photoelektronenbeugung gezeigt. Diese Modelle gehen von einem Aufbau der Oberfläche aus 2D-translationssymmetrischen Lagen aus und können auch die Photoelektronenbeugung an Oberflächenrekonstruktionen und Adsorbaten beschreiben. Das in dieser Arbeit vorgestellte vereinfachte dynamische Modell soll die Aspekte der Substrat-XPD beleuchten und die direkte Verbindung von bestimmten Merkmalen in den Beugungsmustern zu Netzebenen im Kristall demonstrieren. Dabei werden zentrale Effekte des Cluster-Modells, wie zum Beispiel die Vorwärtsstreuung entlang dichtgepackter Richtungen, ebenfalls reproduziert. Damit kann über eine Bestimmung der Breite von Kikuchi-Bändern hinausgegangen werden zu einer vollständigen Interpretation von Substrat-XPD-Mustern im Rahmen der Kikuchi-Band-Theorie.

Insgesamt hat man damit zwei Interpretationsmöglichkeiten von XPD-Mustern zur Hand. Einerseits kann man die Beiträge einzelner Atome – mit starker Vorwärtsstreuung – als Grundbausteine der Beugungsmuster betrachten, andererseits kann man reflektierende Gitterebenscharen als diese Bausteine ansehen. Damit ist eine dem konkret vorliegenden Problem angepasste Interpretation von Messdaten möglich.

Das Reziprozitätsprinzip ermöglicht auch die Einordnung verschiedener Elektronenbeugungsmethoden in das vereinheitlichte Schema der Tabelle 4.1. Darin ist gezeigt, welche Methoden bestimmte Arten von „Quellen“ und von „Detektoren“ benutzen. Bei einem Elektronenchannellingmuster wird zum Beispiel die Beugung des Elektronenstrahls einer externen Elektronenquelle mittels des an den Atomkernen befindlichen „Detektors“ der von dort rückgestreuten Elektronen dargestellt. ALCHEMI detektiert die gleichen Effekte des einfallenden Strahls über die an ionisierten Atomen entstehende Röntgenfluoreszenzstrahlung und ist damit zusätzlich elementspezifisch. Hat man nun ein Modell zur Beschreibung von ALCHEMI, so kann man damit im Prinzip auch die Photoelektronenbeugung beschreiben. Man muss sich nur klarmachen, dass dem zu ALCHEMI umgekehrten Weg diejenige Situation entspricht, bei der Elektronen von einem Atom emittiert, auf dem Weg aus dem Kristall hinaus gebeugt und als nahezu ebene Welle in einer definierten Richtung durch den Analysator detektiert werden. So ist es nicht verwunderlich, dass man eine zu ALCHEMI völlig analoge Oberflächenanalysemethode (die mit mittellenergetischen Elektronen arbeitet und damit sehr oberflächenempfindlich ist) als „inverse XPD“ [205] bezeichnet hat.

4.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die theoretischen Grundlagen der verwendeten Simulationsmodelle dargestellt. Es wurden zwei Möglichkeiten vorgestellt, eine kristalline Oberfläche für die Beschreibung von Beugungseffekten zu modellieren: erstens als eine nahezu beliebig strukturierte Ansammlung einer begrenzten Anzahl von Atomen (Cluster) und zweitens als eine dreidimensional periodische Anordnung, die nach Gitterebenen zerlegt werden kann.

An der so beschriebenen Oberfläche sollen Beugungseffekte von Elektronen beschrieben wer-

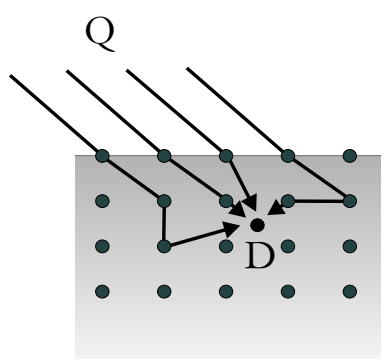
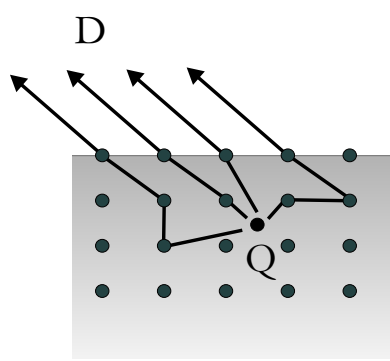
Punktdetektor im Kristall	Punktquelle im Kristall
	
<p><u>ECP</u> Q: winkelabhängig einfallender Elektronenstrahl D: Rückstreuelektronen</p> <p><u>ALCHEMI</u> Q: winkelabhängig einfallender Elektronenstrahl D: Röntgenfluoreszenz</p>	<p><u>EBSD und Kikuchimuster bei LEED und RHEED</u> Q: Rückstreuelektronen D: Beobachtungsschirm</p> <p><u>PED</u> Q: Photoelektronen D: winkelauflösender Elektronenanalysator</p>

Tabelle 4.1: Auflistung verschiedener Methoden, die Atome als Quellen oder Detektoren für Elektronenbeugungseffekte im Kristall benutzen und über das Reziprozitätsprinzip verwandt sind.

den, die entweder von einer Punktquelle im Kristall ausgehen (Photoelektronenbeugung) oder die als ebene Welle in den Kristall eindringen und an einem Punkt im Kristall detektiert werden (Elektronenchannellingmuster). Dazu wurde nach der Darstellung des allgemeinen Formalismus der Mehrfachstreu-Cluster-Theorie, das in dieser Arbeit verwendete Einfachstreumodell der Photoelektronenbeugung genauer vorgestellt. Zur Simulation der Elektronenchannellingmuster wurde dann ein Blochwellenmodell für dreidimensional periodische Kristalle beschrieben. Dieses Modell wurde dann auf die Beschreibung der Photoelektronenbeugung bei kinetischen Energien über 1keV übertragen.

Abschließend erfolgte eine Diskussion der Gemeinsamkeiten und der Grenzen der beiden Ansätze, mit einem Vergleich verschiedener Elektronenbeugungsmethoden. Der Clusteransatz ist effektiv, wenn es ausreicht, Cluster mit relativ wenigen Atomen zu betrachten. Dies ist bei niedrigen Elektronenergien der Fall. Bei höherer Energie wird das Wechselwirkungsvolumen der Elektronen so groß, dass es möglich wird, von einer periodischen Anordnung von Atomen auszugehen. Die Anwendungsbereiche beider Modelle überschneiden sich, so dass es möglich ist, die röntgenangeregte Photoelektronenbeugung sowohl in einem Clustermodell, als auch in einem vereinfachten dynamischen Kikuchi-Band-Modell zu beschreiben. Damit kann die Äquivalenz des SSC-Modells und des Kikuchi-Band-Modells in beiden Richtungen gezeigt werden. Die zentrale Rolle des Reziprozitätsprinzips bei der Übertragung von XPD-Simulationsmodellen aus anderen Bereichen der Elektronenbeugungstheorie wurde herausgestellt.

5 Datenauswertung und Theorievergleich

Die den benutzten Simulationsmodellen zugrundeliegende Theorie wurde bereits beschrieben. Zu klären ist noch, welche Arbeitsschritte nötig sind, um die experimentell gemessenen Daten untereinander und mit der Theorie vergleichen zu können und wie der quantitative Vergleich zwischen Simulation und Experiment durchgeführt wird. Dies ist besonders für die Photoelektronenbeugung von Bedeutung, da bei der Strukturbestimmung ein quantitatives Maß für die Übereinstimmung mit der Simulation einer Reihe von Vergleichsmodellen benötigt wird. Dies geschieht jeweils über χ -Funktionen und R-Faktoren, wie im Folgenden erläutert.

5.1 Photoelektronenbeugung

5.1.1 Darstellung der Daten

Jedes XPD-Experiment erfordert die Auswertung von großen Datenmengen. Es müssen zuerst die gewünschten Peaks der Schalelektronen gemessen und diese dann nach Peakhöhe und Intensität analysiert werden. Die so erhaltenen winkelaufgelösten Peakdaten können dann bei Polarscans als ein einzelnes Intensitäts-Polarwinkel-Diagramm, bei Variation von Azimut und Polarwinkel dann als zweidimensionales Beugungsmuster dargestellt werden. Um möglichst viele Informationen aus den Messdaten zu erhalten, ist oft eine weitere Datenbearbeitung notwendig.

5.1.1.1 Vollständige Beugungsmuster

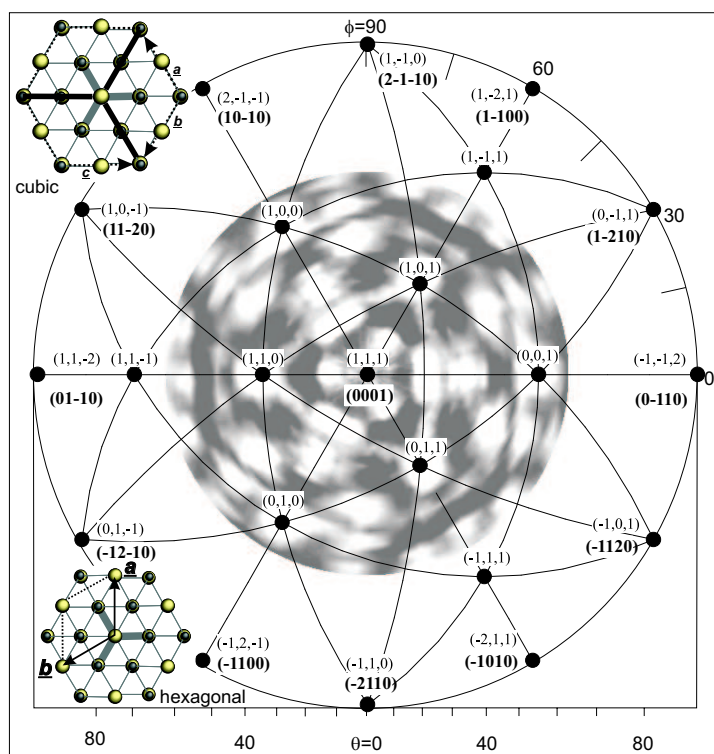


Abb. 5.1: Zuordnung von stereographischer Projektion und experimentellem Koordinatensystem [23] (mit einem XPD-Muster eines kubischen SiC-Kristalls)

In Abb. 5.1 ist gezeigt, wie die von Polar- und Azimutwinkel abhängigen Intensitäten in einer zweidimensionalen Form¹ dargestellt werden können. Es handelt sich dabei um eine winkeltreue stereographische Projektion. Im Folgenden werden diese Darstellungen einfach „Beugungsmuster“ genannt.

Die Zuordnung von hexagonalem und kubischem Kristallgitter (mit den jeweiligen drei- bzw. viergliederigen Miller-Indizes) zum experimentellen Koordinatensystem aus Polar- und Azimutwinkel ist in der Abbildung ebenfalls definiert. Im Folgenden bezeichnen also „Azimut=30°“, (10-10) und (2-1-1) alle die gleiche Ebene. Die anderen Zuordnungen können aus der Abbildung entnommen werden.

5.1.1.2 Polarscans und Azimutscans

Mit der Bezeichnung „Polarscan“ ist im Folgenden die Darstellung von Intensitätsdaten über dem Polarwinkel bei festgehaltenem Azimut gemeint. Es handelt sich also praktisch um Schnitte durch das vollständige Muster entlang einer bestimmten Azimutrichtung. Da die Kristallgitter von SiC und AlN aus hexagonal dichten Kugelpackungen bestehen, sind die Schnittebenen bei 0°, 30° und 60° am wichtigsten. Es zeigt sich, dass häufig die Messung eines Polarscans ausreicht, um die nötigen Informationen zu erhalten. Andererseits enthalten die kompletten Beugungsmuster oft wichtige zweidimensionale Merkmale, die ein Polarscan nicht wiedergeben kann. Analog zu den Polarscans können „Azimutscans“ bei festgehaltenem Polarwinkel gemessen werden. Durch einen Azimutscan lässt sich sehr gut die Symmetrie des Beugungsmusters bestimmen.

5.1.2 χ -Funktionen

Experimentell gemessene Beugungsmuster für Substratemitter zeigen einen allgemeinen Abfall der Intensität zu hohen Polarwinkeln θ hin. Zu beachten sind weiterhin instrumentelle Einflüsse der Analyseanlage, die ebenfalls winkelabhängig sein können. Alle Effekte treten generell bei der Photoelektronenspektroskopie auf und überlagern die Intensitätsvariationen, die aufgrund von Beugungseffekten auftreten.

Da die Theorie nur die Beugungsinformation simulieren kann, ist die Extraktion dieser reinen Beugungsinformation aus den experimentellen Daten wünschenswert. Außerdem kann man so auch mehrere Experimente, die unter unterschiedlichen Bedingungen durchgeführt wurden, direkt vergleichen.

Zur Betonung der Beugungsinformation wird ein Untergrund ermittelt, der nicht vom Azimut abhängen soll und der sich mit dem Polarwinkel wesentlich langsamer ändert, als die Beugungsvariationen in den Messdaten. Die Bestimmung dieses Untergrundes bei einem bestimmten Polarwinkel ist durch die Mittelung eines bei diesem Polarwinkel gemessenen vollen Azimutscans möglich. Wie Seelmann-Eggebert in [61] gezeigt hat, ist zusätzlich eine Glättung in polarer

¹Bezeichnungen in der Literatur: „full hemispherical pattern“, „full hemispherical photoemission intensity maps“ [81], „diffraction pattern“ [49], „photoelectron angular distribution“

Richtung notwendig, um alle Einflüsse der Beugungspeaks zu beseitigen. Der ungebeugte Untergrund kann also durch Mittelung des vollen Beugungsmusters über einen ausreichend großen Raumwinkelbereich ermittelt werden.

Die Beugungsinformation kann nun extrahiert werden, in dem man den Untergrund I_0 von den Originaldaten I subtrahiert und auf ihn normiert. Das Ergebnis ist die sogenannte χ -Funktion:

$$\chi(\theta) = \frac{I(\theta) - I_0(\theta)}{I_0(\theta)} \quad (5.1)$$

Die Verwendung von χ -Funktionen erfolgt in den meisten Publikationen über XPD, wobei allerdings häufig die polare Mittelung nicht explizit erwähnt wird [54, 61, 73, 206, 207].

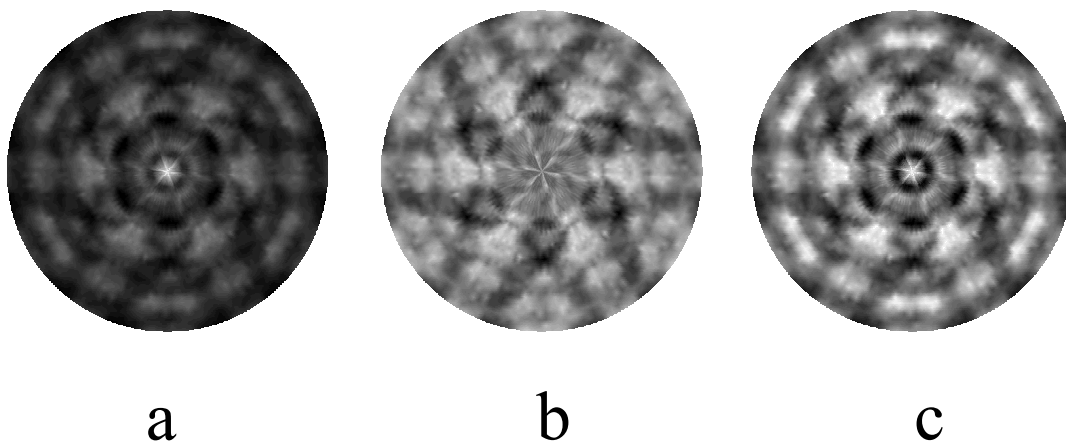


Abb. 5.2: χ -Ermittlung aus gemessenen Intensitäten: (a) Rohdaten, (b) χ durch azimutale Mittelung, (c) χ durch azimutale und polare Mittelung

Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 5.2 gezeigt, wie aus den Originaldaten das χ -Bild entsteht. Teil (a) der Abbildung zeigt die unbearbeiteten Messdaten, während in Teil (b) die χ -Werte dargestellt sind, die durch Anwendung eines nur azimutal gemittelten Untergrunds erhalten werden. Es ist zwar eine deutliche Kontraststeigerung eingetreten, dafür verschwinden aber im Zentrum der Abbildung die charakteristischen, ringförmig aufgehellten Strukturen und der zentrale Peak. Das χ -Bild in Teil (c) der Abb. 5.2 erscheint dagegen in den Randpartien ebenso deutlich aufgehellt, enthält aber weiterhin alle Beugungsstrukturen, die auch im Originalbild zu sehen sind. Deutlich treten die radial nach außen verlaufenden Streifen hervor, die in den Rohdaten nicht so klar sichtbar sind. Die Notwendigkeit einer Mittelung des Beugungsmusters über einen größeren Raumwinkelbereich zur Ermittlung des ungebeugten Untergrunds ist durch die Abb. 5.2 deutlich demonstriert.

Für einzelne Polarplots kann man zur Ermittlung von I_0 als Näherung die Interpolation der polaren Datenpunkte durch eine kubische Spline-Funktion benutzen. Im MSCD-Paket [152] ist dazu das Programm `calchi` vorhanden. Im Rahmen der Auswertungsprozedur wird der Untergrund symmetrisiert, da dies im `calchi`-Programm nicht vorgesehen ist [3].

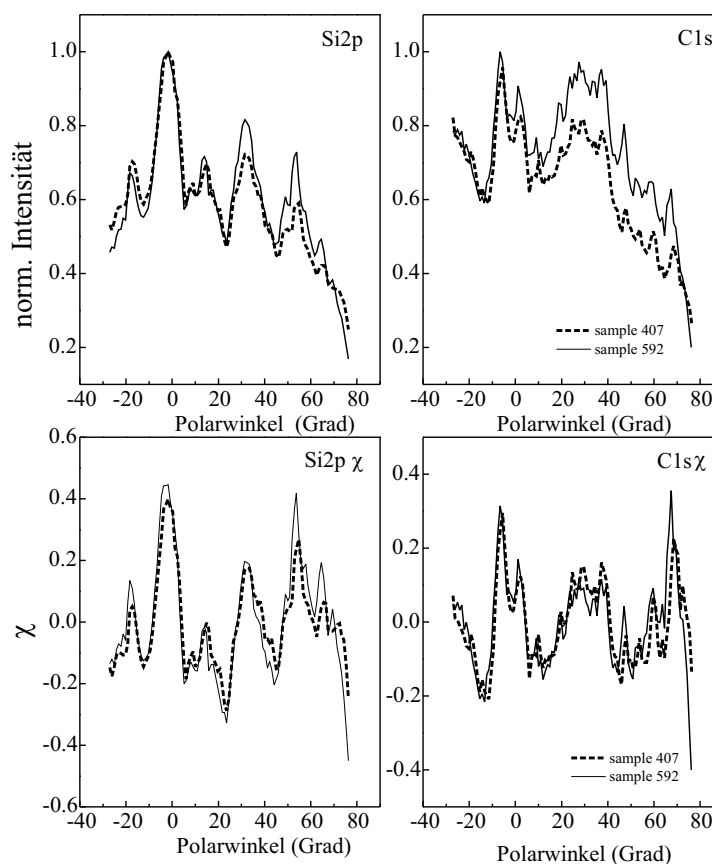


Abb. 5.3: Zur Zuverlässigkeit der χ -Ermittlung bei verschiedenen Proben

In Abbildung 5.3 ist weiterhin zu erkennen, dass die χ -Kurven, die aus den Messungen an zwei verschiedenen Proben gewonnen wurden, sichtbar besser übereinstimmen als die einfach normierten Originalmessungen. Damit soll der angestrebte Nutzen der χ -Kurven verdeutlicht werden.

Obwohl für die theoretischen Kurven eine exakte Bestimmung des ungebeugten Untergrunds als Anteil der direkten Welle möglich ist, wurde das gleiche Verfahren wie für die experimentellen Kurven zur χ -Bildung gewählt. Damit soll der relative Fehler zwischen theoretischen und experimentellen χ -Funktionen verringert werden, da die Bildung der χ -Funktionen nicht eindeutig definiert ist und selbst eine Fehlerquelle darstellt [208].

5.1.3 R-Faktoren

Die Übereinstimmung zwischen Messung und Simulation kann mit Hilfe sogenannter R-Faktoren (reliability factors) quantitativ angeben und im Rahmen einer Fitprozedur durch Variation der theoretischen Parameter optimiert werden.

In [209] findet man eine Übersicht über eine Reihe von nutzbaren R-Faktoren. Im Rahmen der Photoelektronenbeugung werden sehr häufig zwei R-Faktoren R_a und R_2 angewendet [65, 210–213], welche sich nur in der Normierung unterscheiden. Sie benutzen als Maß für die Übereinstimmung die quadratische Abweichung der beiden Kurven voneinander. Um zwei χ -Kurven χ_1 und χ_2 (mit jeweils n Datenpunkten an gleichen Positionen) zu vergleichen, kann

man also definieren:

$$\begin{aligned}
 R_2 &= \frac{\sum_n (\chi_1 - \chi_2)^2}{\sum_n (\chi_1)^2} \\
 R_a &= \frac{\sum_n (\chi_1 - \chi_2)^2}{\sum_n (\chi_1)^2 + (\chi_2)^2}
 \end{aligned}
 \tag{5.2}$$

Dabei hat der R-Faktor R_a den Vorteil der Symmetrie gegenüber Vertauschung der beiden Funktionen. Bei R_2 muss angegeben werden, auf welche Funktion normiert wurde. Werte von $R_a < 0.1 \dots 0.05$ sind der Maßstab für die besten Übereinstimmungen zwischen Theorie und Experiment [210, 214, 215]. Diese R-Faktoren können mit dem Programm `caldif` des MSCD-Pakets berechnet werden, das auch im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurde. Für den Vergleich von LEED-I-V-Kurven wird der Pendry-R-Faktor R_{Pendry} [216] benutzt, der auf der logarithmischen Ableitung beruht und damit empfindlich für die Übereinstimmung von Peakpositionen ist und Intensitätsunterschieden weniger Gewicht beimisst. Dies ist im Falle von LEED oft von Vorteil [19].

5.2 Elektronenchannellingmuster und Rückstreumuster

Die Elektronenchannellingmuster werden computergesteuert aufgenommen und als Rasterbild in Abhängigkeit der x-y-Ablenkung des Elektronenstrahls dargestellt. Die Ablenkwinkel liegen im Bereich von maximal etwa 5 Grad, so dass die Darstellung auch näherungsweise linear im Ablenkwinkel und in den Wellenzahlvektorkomponenten ist. Die Rückstreumuster wurden bei der RHEED-Anordnung in ca. 30cm Abstand von der Probe mit einer Winkelausdehnung von etwa 10° auf einem Leuchtschirm beobachtet, so dass Verzerrungen der Kikuchilinien wegen der gnomonischen Projektion [23] ebenfalls noch klein sind. Die Kikuchilinien können somit direkt mit kinematischen Darstellungen verglichen werden, wie sie zum Beispiel das für diese Arbeit benutzte Programm „Electron Diffraction“ [217] liefert. Dieses geht von einer Darstellung aus, die linear im reziproken Raum ist. Im Falle der LEED-Anordnung treffen die Elektronen auf einen sphärischen Schirm mit einem Sichtwinkel von etwa 100 Grad. Diese sphärische Projektion muss beim Vergleich mit der Simulation beachtet werden. Die Rückstreumuster wurden mit einer Videokamera aufgenommen und zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses über eine Anzahl von Aufnahmen gemittelt.

6 Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Untersuchungen an SiC- und AlN-Proben dargestellt. Es wird gezeigt, wie die untersuchten Methoden die Analyse des Polytyps und der Polarität dünner Filme aus diesen Materialien ermöglichen. Die in Abschnitt 4.2 und 4.3 dargestellten Theorien für Photoelektronenbeugung und Elektronenchannellingmuster werden an experimentellen Messungen getestet.

SiC und AlN besitzen ähnliche Kristallstrukturen, ähnliche Dichten und elektronische Eigenschaften. Dies ist auf die Nähe aller beteiligten Atome im Periodensystem zurückzuführen. AlN kann als 2H-Polytyp gewachsen werden, während das für SiC noch nicht der Fall ist. Wegen der ähnlichen Streueigenschaften werden die Untersuchungen an beiden Materialien deshalb zusammen dargestellt. AlN wird hier praktisch als experimenteller „Ersatz“ für 2H-SiC benutzt, um die theoretisch vorhergesagten Beugungsmuster zumindest näherungsweise zu prüfen.

6.1 Vorausgehende Untersuchungen

6.1.1 Tiefenempfindlichkeit

Bei der Analyse von dünnen Schichten mittels Elektronenbeugungsmethoden stellt sich die Frage nach der Tiefenempfindlichkeit. Aus welchen Oberflächenschichten können Photoelektronen oder quasielastisch rückgestreute Elektronen wesentlich zum Beugungsmuster beitragen?

Da es um Beugungsinformationen von Elektronen einer bestimmten Energie geht, wird die inelastische mittlere freie Weglänge (IMFP) ein entscheidender Faktor sein. Nachdem nämlich ein Elektron auf seinem Weg durch den Festkörper einen inelastischen Verlust erlitten hat, geht es für die Entstehung der Beugungsinformation praktisch verloren. Wenn also im Mittel fast alle Elektronen mindestens einmal einen solchen Verlust erlitten haben, ist keine Beugungsinformation von ihnen mehr beobachtbar. Die Informationstiefe für solche Beugungsdaten liegt nach diesem Argument dann also in der Größenordnung der IMFP.

Für die ECP hat Yamamoto [218–220] gezeigt, dass die Materialtiefen, die für die Channellingmuster eine Rolle spielen, bei näherungsweise $1.5/\mu_0$ liegen, wobei μ_0 der mittlere Absorptionskoeffizient des Materials ist. Dieser beschreibt den exponentiellen Abfall der Intensität mit der Tiefe z und steht damit in engem Zusammenhang mit der IMFP.

Für die Rückstreumuster im Falle von RHEED kann die Tiefenempfindlichkeit über die Komponente des einfallenden Elektronenstrahls senkrecht zur Oberfläche abgeschätzt werden. Bei 35keV Einfallenergie und einem Einfallswinkel von 3° zur Oberfläche beträgt die Komponente senkrecht in die Probe hinein nur 1.8keV, bei 5° entsprechend 3.0keV. Die Elektronen können also vor ihrer quasielastischen Streuung nur in Tiefen vordringen, die durchaus mit denen bei XPD oder ECP vergleichbar sind.

Bei LEED verringert sich die Tiefenempfindlichkeit noch mehr, weil die elastisch gestreuten Elektronen des einfallenden Strahls beobachtet werden. Diese müssen aber sowohl den Weg in den Kristall hinein, als auch den Weg hinaus ohne inelastische Verluste überstehen. Gegenüber

den anderen Methoden, wo die beobachteten Elektronen schon im Kristall entstehen oder dort detektiert werden, besitzt also LEED eine etwa um den Faktor 2 verringerte Tiefenempfindlichkeit. Das gleiche gilt dann für die elastischen RHEED-Muster.

Für SiC ist die IMFP für Elektronen einer bestimmten Energie nach dem empirischen Modell von Seah und Dench in Formel 4.41 abschätzbar. Diese Formel ist günstig, weil sie bis zu Energien von 6keV gültig ist und damit den Bereich von LEED bis zu den ECP überdeckt. Jedoch sind die erhaltenen Werte mit einem relativ großen Fehler behaftet (Faktor 1.36 für die rms-Abweichung, S. 30), da die Formeln aus Anpassungen an eine große Anzahl von Materialien gewonnen wurden [21]. Aus der Abbildung 6.1 lässt sich damit ein Eindruck über die Größenordnung gewinnen, in der die Tiefenempfindlichkeit einer Methode liegt. Für den Fall der XPD soll dies im folgenden noch näher untersucht werden.

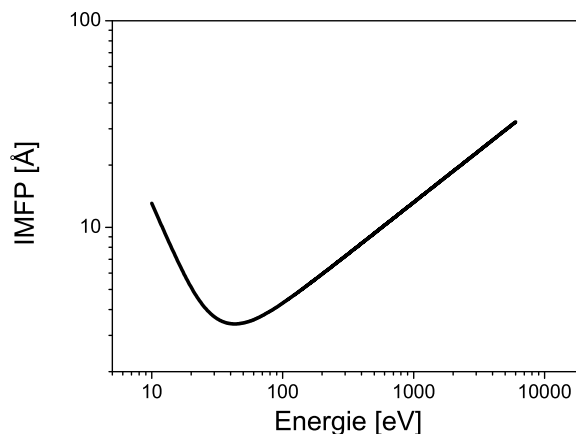


Abb. 6.1: IMFP in Siliziumkarbid nach der Formel 4.41 von Seah&Dench

6.1.1.1 Mittlere Freie Weglänge der Photoelektronen

		MgK _α	AlK _α			MgK _α	AlK _α
Si2p	Energie	1155eV	1387eV	C1s	Energie	970eV	1203eV
	Tanuma IMFP	21Å	24Å		Tanuma IMFP	18Å	22Å
	Fit	18Å	20Å		Fit	15Å	18Å

Tabelle 6.1: Inelastische mittlere freie Weglängen λ für SiC

Die IMFP der Photoelektronen wurde hier mit der aus theoretischen Ansätzen abgeleiteten Tanuma-Powell-Penn Formel 4.40 berechnet, die für Energien bis 2000eV gilt. Nach dieser Formel ergeben sich die in Tabelle 6.1 dargestellten IMFP.

Im Rahmen einer Anpassung der simulierten Beugungsmuster an die experimentell gemessenen wurde gefunden, dass eine Reduktion der theoretischen Abschwächlänge um den Faktor 1.2 die beste Übereinstimmung mit dem Experiment liefert (in Tabelle 6.1 unter Fit). Veränderungen von λ um bis zu 25% des gefitteten Wertes hatten keine Auswirkung auf die Ergebnisse zur Polytypen- und Polaritätsunterscheidung. Dies liegt darin begründet, dass häufig qualitative Aussagen über die entstehenden Beugungsmuster für das Ergebnis entscheidend sind (z.B. „Peak X ist immer höher als Peak Y“).

Die IMFP bestimmt die für die Simulation notwendige Clustergröße. Zur Bestimmung dieser Clustergröße wurde angenommen, dass bei einem Clusterradius von 50\AA ($\approx 2\lambda$) die Rechnung auf jeden Fall konvergiert sein wird. Dann wurden Simulationen für steigende Clusterradien durchgeführt und die Annäherung an das Ergebnis für 50\AA über den R-Faktor R_2 gemessen. In Abbildung 6.2 ist das Ergebnis für eine angenommene Winkelauflösung von 1° dargestellt (dem Cluster mit 50\AA Radius entspricht definitionsgemäß der R-Faktor 0). Bei einem Clusterradius von $20\text{--}25\text{\AA}$ wird der R-Faktor von 0.02 unterschritten, welcher im Bereich der experimentellen Variation von Messungen an derselben Probe liegt. Deshalb kann gefolgert werden, dass ein Clusterradius von maximal 25\AA zur Simulation der Beugungsmuster notwendig ist. Mit diesem Radius, der Clustern mit mehr als 3000 Atomen entspricht, wurde in den folgenden Simulationen gearbeitet.

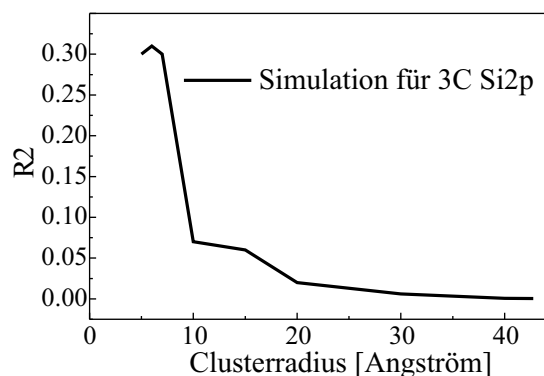


Abb. 6.2: Festlegung des Clusterradius

6.1.1.2 Mehrfachstreurechnungen für charakteristische Atomketten

Die Streupeaks in Richtung dichter gepackter Atomketten werden durch eine SSC-Simulation meistens als viel zu groß wiedergegeben, da Mehrfachstreueffekte entlang dieser Ketten nicht berücksichtigt sind. Befinden sich vor einem Emitteratom mehrere Streuatome in einer Linie, so führt das ab einer bestimmten Anzahl von Atomen dazu, dass der charakteristische Vorwärtstreuppeak dieses Emitters völlig verschwindet - er wird „defokussiert“. Sind hingegen nur wenige Atome vor dem Emitter, so erhöht sich die Intensität in Vorwärtsrichtung sogar, es findet eine „Fokussierung“ statt. Wann die Defokussierung einsetzt, ist eine Frage der Anordnung der Atome und ihrer Streueigenschaften.

In experimentellen Untersuchungen [221–225] fand man, dass mit steigender Elektronenenergie und wachsendem Atomabstand in der Kette auch die zur Defokussierung des Vorwärtstreupeaks notwendige Atomanzahl steigt. Dicht gepackte Atomketten sollten also am stärksten defokussieren. Dies wird auch durch theoretische Arbeiten von Xu [226] und Aebischer [227] bestätigt. Um diese Effekte zu erfassen, wurden im Rahmen dieser Arbeit für einige wichtige Ketten in SiC Mehrfachstreurechnungen durchgeführt. Diese Rechnungen liefern weitere Anhaltspunkte über die Tiefenempfindlichkeit der XPD bei den betrachteten Energien.

Im SiC kommen sowohl reine Si- und C-Ketten, als auch gemischte Ketten vor, in denen sich Si- und C-Atome abwechseln. In Abbildung 6.3 ist der Vorwärtstreuppeak der Si-C-Kette in $[111]$ -Richtung von 3C SiC für eine ansteigende Zahl von Streuern vor einem Si-Emitteratom aufgetragen. Diese Kette führt zu dem starken Streuppeak in Normalemission. Die Rechnungen wurden mit dem MSCD-Programm mit Mehrfachstreuung bis zur 8. Ordnung durchgeführt. Es

wurde eine Abschwächlänge von 25\AA angenommen. Im Teil A der Abbildung ist die Rechnung

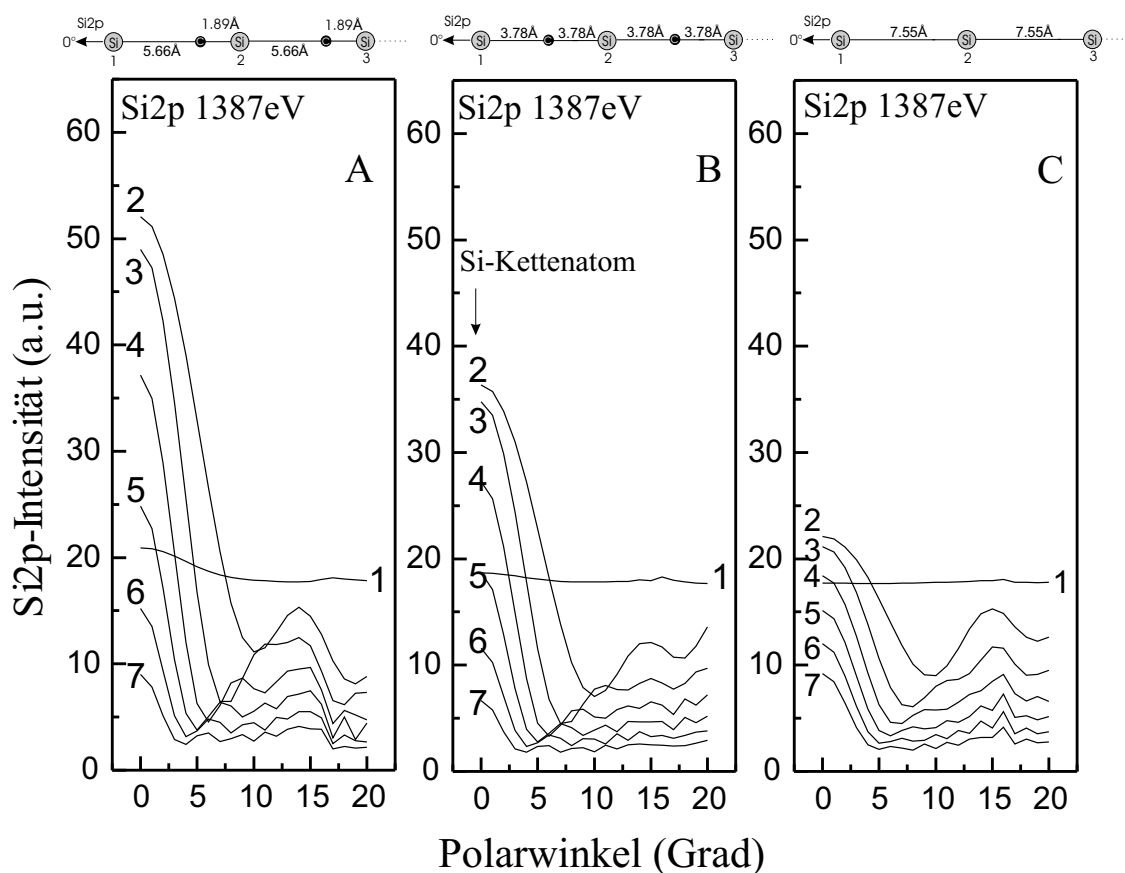


Abb. 6.3: MSCD Rechnungen für Si2p in der (111)-3C-SiC-Kette. Die zugehörigen Ketten sind jeweils über den einzelnen Diagrammen A,B und C gezeigt.

für eine unveränderte [111]-Kette gezeigt, bei Teil B wurden die C-Atome symmetrisch zwischen zwei Si-Atome gelegt und in Teil C wurden die C-Atome ganz fortgelassen. Es ist gut zu erkennen, dass die im Vergleich zu Si schwächer streuenden C-Atome einen wesentlichen Beitrag zur Vorwärtsstreuung liefern: werden sie vernachlässigt, dann verringert sich wegen des 7.55\AA großen Abstandes der Si-Atome die Vorwärtsstreuintensität erheblich. Die asymmetrische Lage der C-Atome relativ dicht (1.89\AA) hinter jedem Si-Atom führt einmal dazu, dass sie wegen der quadratischen Abstandsabhängigkeit der Elektronenintensität noch relativ viel Intensität streuen können; andererseits verhindert der dann nachfolgende große Abstand von 5.66\AA bis zum nächsten Si-Atom eine effektive Defokussierung, die bei gleichmäßig dichten Atomabständen eher eintritt. Dies erkennt man zum Beispiel in Teil B der Abbildung 6.3, wo für den 7.Si-Emitter bei gleichmäßigen Atomabständen eine geringere 0° -Peakhöhe vorliegt, als bei der asymmetrischen Kette von Teil A der Abbildung und bei der Kette ohne C-Atome in Teil C. Die Mehrfachstreurechnungen belegen also die wichtige Rolle der speziellen Anordnung der Streuatome in einer Kette.

Drei zu [111] äquivalente Ketten finden sich in den anderen Bindungsrichtungen des Si-C Tetraeders (Polarwinkel: $\theta = 72.1^\circ$). Wegen des flachen Winkels zur Oberfläche verringert sich die Informationstiefe dann entsprechend der $\cos \theta$ -Abhängigkeit auf etwa 14\AA . In anderen Richun-

gen liegen jeweils monoatomar besetzte Ketten vor, die zum Teil dichter gepackt sind als die in [111]-Richtung. Deshalb und wegen des größeren Austrittswinkels ist dort eine entsprechend geringere Informationstiefe zu erwarten. Für die am dichtesten gepackte Si-Kette, für die also auch der stärkste Defokussierungseffekt auftreten sollte, wurden deshalb ebenfalls Simulationen durchgeführt. Diese Kette liegt im SiC-Kristall bei den Polarwinkeln von 35° in Richtung der Si-Atome der nächsten Doppellage. Die maximale Anisotropie wird nach 4 Atomen erreicht, bis dorthin findet also mindestens eine Fokussierung statt. Danach sinkt die relative Höhe des Vorwärtsstreupeaks, ist aber bis zu einer Länge von etwa 8 Atomen immer noch größer als 10% der bei 4 Atomen maximal erreichten Intensität (Definition der Defokussierungslänge nach Aebischer [227]). Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit veröffentlichten Literaturwerten. Valeri [225] gibt für Al - unmittelbar neben Si im Periodensystem - eine Fokussierung bis zu 10 Atomen im keV-Bereich an. Aebischer [227] errechnete für Al eine komplette Defokussierung nach etwa 7-8 Atomen. Aus der erwähnten Literatur geht ebenfalls hervor, dass die Anzahl der Atome bis zur Defokussierung mit steigender Energie und steigendem Atomabstand zunimmt.

Alle anderen Ketten des SiC besitzen einen größeren Atomabstand als 3.08\AA und zeigen somit zumindest keine raschere Defokussierung. Die am dichtesten gepackte Kette stellt also den Extremfall dar, aus dem abgeschätzt werden kann, dass für lineare Si-C- und Si-Ketten bei etwa 1keV von einer Informationslänge von mindestens 7 Atomen entlang dieser Ketten ausgegangen werden kann. Da die meisten deutlichen Peaks in den Polarscans von Ketten herühren, deren Atome in der nächsten oder übernächsten Doppellage liegen, ergibt sich für den gesamten Polarscan prinzipiell eine Informationstiefe zwischen 7 und höchstens 14 Doppellagen.

6.1.2 Anwendbarkeit des Einfachstreumodells

Die Mehrfachstreuung im SiC-Kristall entlang der Atomketten in der Normalenrichtung und bei 35° Polarwinkel in der (11-20)-Ebene hat die größten Auswirkungen auf die Unterschiede zwischen den Einfachstreusimulationen und dem Experiment. Es zeigt sich, dass besonders der Peak der Normalemission durch die SSC-Rechnungen zu breit wiedergegeben wird (siehe z.B. Abb. 6.16). Die schmalen experimentellen Peaks sind eine bekannte Auswirkung der Mehrfachstreuung [49]. Die Überschätzung der Intensität in dichtgepackten Richtungen durch die SSC-Rechnungen kann durch eine empirische Reduktion der Streuamplituden größtenteils beseitigt werden [164]. Jedoch bleibt der Nachteil der Einfachstreusimulationen bestehen, die *relativen* Intensitätsverhältnisse der stärksten Peaks teilweise nicht korrekt zu reproduzieren. Abseits dieser Peaks besteht im allgemeinen eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie. Zur möglichst guten Anpassung der Theorie an das Experiment legte ich in meinen Simulationen größeren Wert auf die Übereinstimmung der Kurven abseits der Normalemission. Deshalb zeigen die unten folgenden Simulationen häufig bei 0° Polarwinkel eine weniger gute Übereinstimmung mit den experimentellen Kurven. Da in dieser Richtung aber auch die Mehrfachstreueffekte besonders groß sind und deshalb die Aussagekraft der SSC-Simulationen

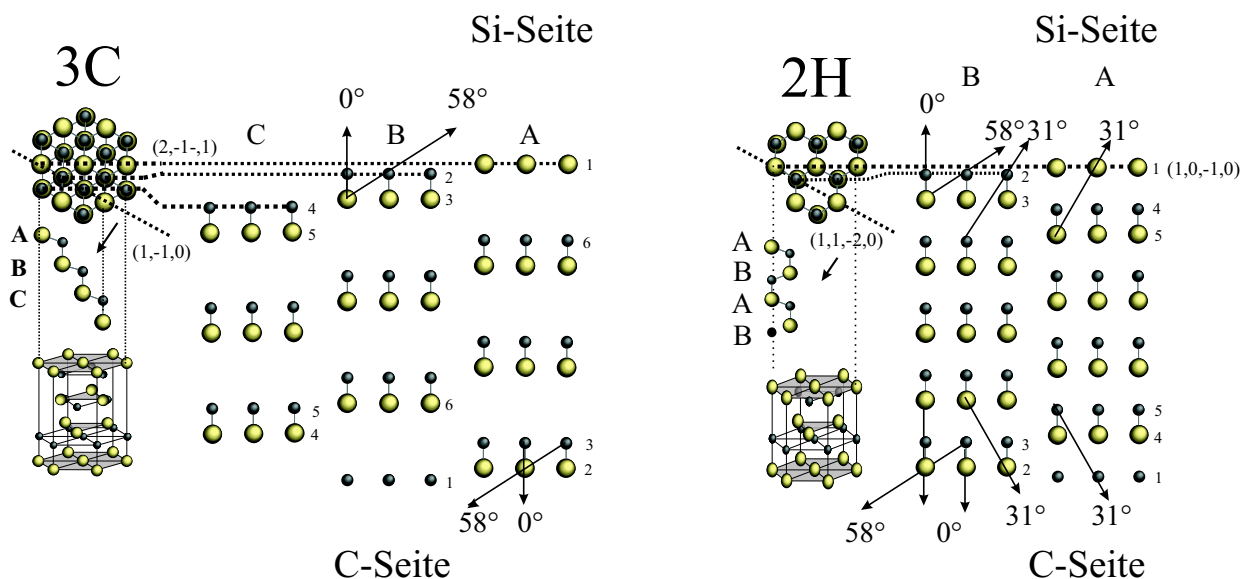


Abb. 6.4: Zur Polaritätsbestimmung mittels XPD

entsprechend geringer ist, halte ich dieses Vorgehen für sinnvoll. Die hier erwähnten Grenzen der Einfachstreuungssimulationen bei der quantitativen Reproduktion der experimentellen Intensitätsverhältnisse in dichtgepackten Richtungen ließen die generelle Benutzung von R-Faktoren (quantitative Angabe der Übereinstimmung zwischen zwei ganzen Polarplots) für die Polytypenunterscheidung zu unsicher erscheinen. Statt dessen habe ich mich auf einzelne charakteristische Merkmale der Beugungsmuster konzentriert, in denen die Unterschiede am deutlichsten zu Tage treten und die von den SSC-Simulationen richtig wiedergegeben werden. Dort, wo die Benutzung von R-Faktoren nutzbringend schien, wurden sie in Einzeluntersuchungen auch eingesetzt. Trotz der ihnen innewohnenden Beschränkungen wird sich unten zeigen, dass SSC-Simulationen die Strukturen der experimentell beobachteten SiC- und AlN-Beugungsmuster gut wiedergeben und dass sie die zur Polytypen- und Polaritätsunterscheidung nötigen Erkenntnisse liefern können.

6.2 Polytypen und Polaritäten

6.2.1 Polaritätsbestimmung

6.2.1.1 Polaritätsbestimmung mit XPD

Die (0001) und (000-1)-Oberflächen von SiC enthalten jeweils Silizium- bzw. Kohlenstoffatome als äußerste Schicht. Wegen der unterschiedlichen Elektronegativität dieser beiden Atome handelt es sich deshalb um polare Oberflächen, die als Silizium- bzw. Kohlenstoffseite bezeichnet werden. Eine *ex-situ* Unterscheidung beider Seiten ist zum Beispiel aufgrund ihres unterschiedlichen Ätzverhaltens möglich. Die XPD ermöglicht eine zerstörungsfreie Differenzierung aufgrund der unterschiedlichen relativen Streustärken und der gegenseitigen Abstände der C- bzw. Si-Atome auf beiden Seiten.

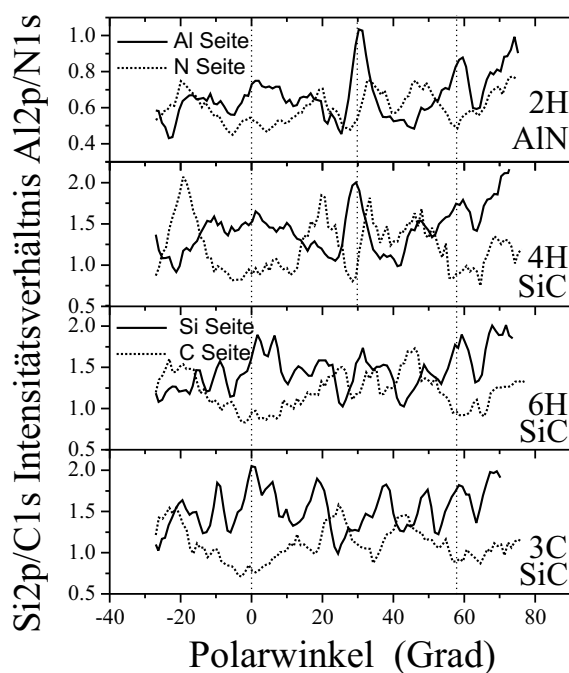


Abb. 6.5: Experimentelle Intensitätsverhältnisse in der (10-10)-Ebene

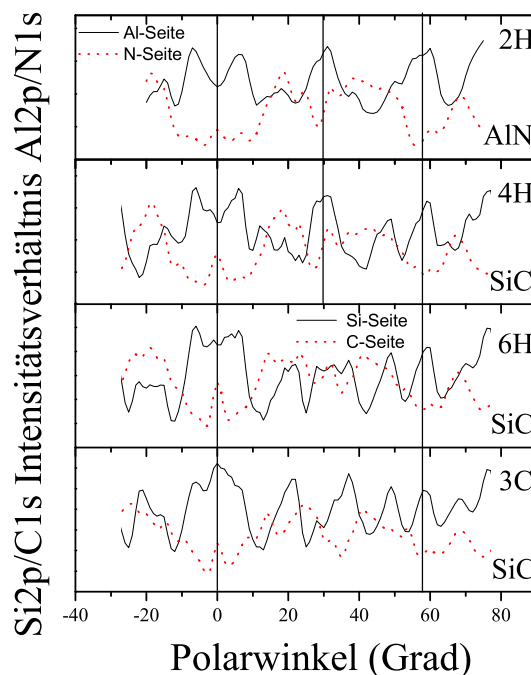


Abb. 6.6: Theoretische Intensitätsverhältnisse in der (10-10)-Ebene, SSC-Simulationen

Als geeignet zur Polaritätsbestimmung hat sich das Verhältnis von Si2p zu C1s-Intensität erwiesen, weil es in bestimmten Richtungen für beide Seiten charakteristische Unterschiede aufweist. Wichtig sind dabei die 0° -Richtung und die Polarwinkel 31° und 58° in der (10-10)-Ebene, die in Abbildung 6.4 gezeigt ist. Dort sind auch die Atomlagen, die für die folgende Diskussion von Bedeutung sind, durch Nummern bezeichnet.

In Abbildung 6.4 ist jeweils für die Polytypen 3C und 2H zu sehen, wie in der 0° -Richtung die relative Lage der Kohlenstoff- und Siliziumatome auf beiden Seiten zueinander vertauscht ist. Auf der C-Seite (in Abb. 6.4 unten) wird die C1s-Emission der Lage 3 durch stark streuende Si-Atome der Lage 2 verstärkt, während auf der Si-Seite (in Abb. 6.4 oben) die Si2p-Emission der Lage 3 durch die dort in der Lage 2 vorhandenen Kohlenstoffatome verstärkt wird.

Beim 3C-Polytyp liegen erst die Atome der Lage 6 wieder unter der ersten Lage, so dass eine sichtbare Asymmetrie zwischen den Abständen der jeweils komplementär besetzten Lagenpaare 2-3 und 6-1 besteht. Als Folge davon liegt für 3C insgesamt ein relativ großes Si2p/C1s-Verhältnis auf der Si-Seite (≈ 2) und ein kleines Verhältnis auf der C-Seite (≈ 0.7) in Normalenrichtung vor. Dies ist in Abbildung 6.5 zu sehen, wo experimentelle Messungen zur Polaritätsbestimmung gezeigt sind. Es ist zu erkennen, dass das Intensitätsverhältnis in Normalenmission ein zuverlässiger Indikator für die Polarität der Polytypen 3C, 4H und 6H ist. Der 2H-Polytyp wird durch AlN repräsentiert.

Beim 2H-Polytyp befindet sich wegen des Stapelfehlers schon die vierte Lage wieder unter der ersten, so dass sich die Asymmetrie der Vorwärtsfokussierung für Si- und C-Emitter verkleinert (experimentell: ≈ 0.5 auf der C-Seite zu ≈ 0.7 auf der Si-Seite) und im Rahmen der experimentellen Genauigkeit keine so sichere Polaritätsunterscheidung mehr möglich ist.

Bei 2H AlN gibt es die Möglichkeit der Polaritätsunterscheidung über das Intensitätsverhältnis bei einem Polarwinkel von 31° in der (10-10)-Ebene. Diese Richtung ist charakteristisch für hexagonale Stapelfolgen: das entsprechende Merkmal in den Kurven tritt auch schon bei 4H und in geringem Maße bei 6H auf. Deutlich ist der Unterschied zwischen C- und Si-Seite bei 31° in der experimentellen Messung zu erkennen. Er wird auch theoretisch vorhergesagt, wie aus den simulierten Kurven in Abbildung 6.6 zu ersehen ist. Die Situation in der unmittelbaren Umgebung der 31° -Richtung ist ebenfalls wichtig: Die C-Atome finden starke Si-Streuer gleich in der Nachbarschaft von 31° , die C1s-Intensität steigt also außerhalb von 31° an. Die Si-Atome haben erst weit von 31° entfernt wieder starke Streuer. Zusammen mit der größeren Tiefe der Si-Atome auf der C-Seite ergibt sich ein wesentlich größeres Verhältnis bei 31° auf der Si-Seite (≈ 1.0) im Vergleich zur C-Seite (≈ 0.5), wie im obersten Teil von Abbildung 6.6 zu sehen ist. Eine weitere Unterscheidungsmöglichkeit ergibt sich für *alle* Polytypen in Richtung von 58° in der (10-10)-Ebene (Abbildung 6.4). Die Atome sind auf den beiden Seiten jeweils gegeneinander vertauscht, es ergibt sich analog zu den oben angeführten Betrachtungen ein größeres Si2p/C1s Verhältnis auf der Si-Seite als auf der C-Seite. In der 58° -Richtung steigt jedoch die Oberflächenempfindlichkeit der Messung. Der Einfluss von Verunreinigungen und Rekonstruktionen nimmt zu.

Alle diskutierten Merkmale werden durch die SSC-Simulation der relativen Intensitätsverhältnisse wiedergegeben (Abbildung 6.6). Entsprechende Rechnungen wurden auch für das experimentell nicht beobachtbare 2H SiC durchgeführt. Dieses zeigte die gleichen Merkmale wie 2H AlN. Eine quantitative Angabe des Intensitätsverhältnisses ist hier in der Theorie nicht erfolgt, weil zum Beispiel der Einfluss der Mehrfachstreueffekte, die energieabhängige Auflösung und Empfindlichkeit des Analysators und die unterschiedlichen relativen Wirkungsquerschnitte für die Photoionisation von Si bzw. C nicht berücksichtigt sind. Die relativen Intensitätsverläufe stimmen mit dem Experiment gut überein. Die Mehrfachstreueffekte in Normalenrichtung bewirken jedoch zum Beispiel, dass bei 2H AlN das relative Verhältnis zum 31° -Peak nicht stimmt und auch bei den anderen Polytypen dort Abweichungen in der Kurvenform bestehen.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die Polaritätsunterscheidung für alle Polytypen außer 2H über das Intensitätsverhältnis von Si2p zu C1s in Normalemission möglich ist. Die Polarität des 2H Polytyps kann über das entsprechende Verhältnis bei 31° in der (10-10)-Ebene ermittelt werden.

6.2.1.2 Polaritätsbestimmung mit ECP

Die komplementäre Besetzung der Gitterplätze mit verschiedenen Atomen bei polaren Oberflächen spiegelt sich in Symmetrieveränderungen der Channellingmuster wieder. Diese sind um so stärker, je unterschiedlicher die Streueigenschaften der beiden konstituierenden Atomsorten sind. Die Reflexion an der „Vorderseite“ und der „Rückseite“ einer Netzebenenschar sind nicht mehr äquivalent, was als Verletzung des Friedelschen Gesetzes in nicht zentrosymmetrischen Kristallen bekannt ist [23].

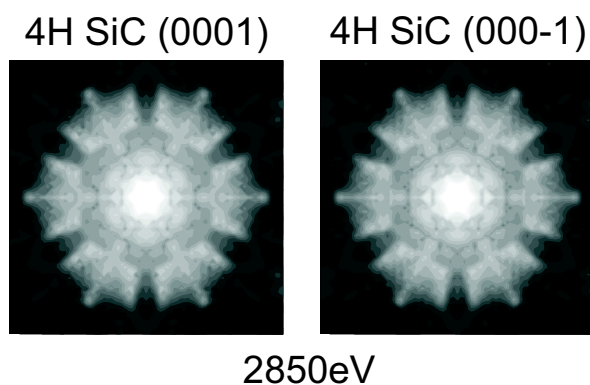


Abb. 6.7: Simulationen zur Polaritätsabhängigkeit der Zonenachsen-ECP bei 4H SiC

Ein Resultat ist zum Beispiel die Brechung der Spiegelsymmetrie in Kikuchi-Bändern, wodurch unter anderem für GaSb [170], ZnS [91] und GaAs [166] die Polaritätsbestimmung mittels Channellingeffekten experimentell und theoretisch gezeigt wurde. Die beobachteten Effekte sind jedoch so klein, dass spezielle Anforderungen an die experimentelle Technik gestellt werden müssen. Dazu gehört eine entsprechend genaue Anordnung von Quelle und Detektor, um geometrische Asymmetrieffekte auszuschließen.

Die Beschreibung der polaritätsabhängigen Channellingeffekte ist mit dem Blochwellenmodell nach Gleichung 4.48 möglich [169, 170]. Für 4H SiC (0001) und (000-1) sind entsprechende Simulationen in Abbildung 6.7 gezeigt. Darin ist zu erkennen, dass vom Modell im beobachteten Bereich nahe der Zonenachse keine Unterschiede in den Intensitätsverteilungen der ECP beider Polaritäten vorhergesagt werden (die entsprechenden Details der Simulationen werden in den Abschnitten 6.2.2.2 und 6.2.3.5 genauer erläutert). Ein experimentelles Muster von 4H SiC(0001) dazu ist in Abbildung 6.19 zu sehen. In [228] wurden Untersuchungen zur Asymmetrie von ECP an SiC beschrieben. Dort wurden jedoch die (0001)-Reflexionen an (10-10) Oberflächen analysiert. Aus den dort dargestellten Daten lässt sich entnehmen, dass die Polaritätsunterschiede sich in der rückgestreuten Intensität durch eine absolute Variation von höchstens 1% bemerkbar machen dürften.

6.2.1.3 Polaritätsbestimmung mit LEED und RHEED

Die Untersuchungen von Starke *et al.* [130] haben gezeigt, dass eine Polaritätsbestimmung von SiC-Proben mittels LEED eindeutig möglich ist. Die I-V-Kurven von C- und Si-Seite unterscheiden sich deutlich und machen über einen R-Faktor-Vergleich mit dynamischen Simulationen eine einfache Differenzierung zwischen beiden Polaritäten möglich. Da die mittlere freie Weglänge der Elektronen im Falle von LEED noch geringer als bei XPD ist, hat die komplementäre Zusammensetzung der beiden Oberflächen einen noch entscheidenderen Einfluss. Eine ähnlich einfach wie bei XPD verständliche Interpretation der Unterschiede in den LEED-I-V-Kurven liegt nicht vor. Es dürfte aber intuitiv verständlich sein, dass die unterschiedlichen Streueigenschaften der Si- und C-Atome in den wechselnden Oberflächengeometrien über veränderte Interferenzbedingungen zu Veränderungen in den I-V-Kurven führen.

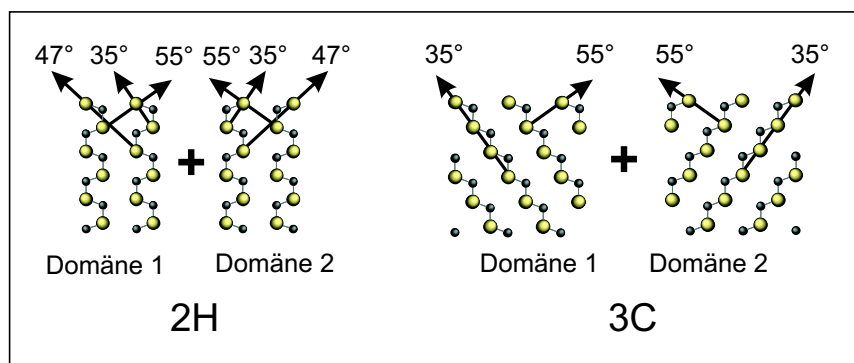


Abb. 6.8: Wichtige Vorwärtsstreurichtungen für Silizium-Emitter in 2H und 3C bei 0° bzw. 180° Azimutwinkel

Für den Fall von RHEED wurden in kinematischen Simulationen von Scharmann *et al.* Unterschiede zwischen den beiden Polaritäten gefunden [229]. Ein experimenteller Nachweis dieses Ergebnisses ist jedoch nicht erfolgt.

6.2.2 Polytypbestimmung

6.2.2.1 Polytypbestimmung mit XPD

Die Polytypunterscheidung per XPD beruht im wesentlichen auf der Existenz spezifischer „hexagonaler“ und „kubischer“ Vorwärtsstreurichtungen, die je nach Polytyp in unterschiedlicher Anzahl vorhanden sind. Dabei kann man sich auf zwei charakteristische Kristallebenen beschränken.

3C-2H Die Unterscheidung der beiden Extremfälle von SiC-Polytypen, 2H und 3C, soll zuerst behandelt werden. Sie ist von prinzipiellem Interesse, da hier die größten Unterschiede zu erwarten sind. In Abbildung 6.8 sind die (11-20)-Ebenen von 2H und 3C zusammen mit wichtigen Streurichtungen von Si-Emittern aus gezeigt. Im folgenden wird beim Polytypvergleich immer davon ausgegangen, dass die Proben mit zwei gegeneinander um 180° gedrehten Domänen vorliegen, wie das in den weitaus meisten Experimenten der Fall war. Dies wird durch unterschiedliche Stapelterminierungen verursacht oder durch das Wachstum von Kristallzwillingen. Für die Polarscans hat das zur Folge, dass in der Beobachtungsebene alle Streurichtungen sowohl bei positiven, als auch bei negativen Polarwinkeln zu finden sind. In Abbildung 6.8 ist dies einmal explizit dargestellt. Speziell behandelte Proben können aber auch mit einer einheitlichen Oberflächenterminierung vorliegen. Dies wird in Abschnitt 6.2.3.4 an einem Beispiel für 6H SiC gezeigt. Die Anwendung der Polytypunterscheidung auf solche einheitlich terminierten Oberflächen wird hier nicht näher untersucht, weil geeignete Proben nicht routinemäßig vorgelegen haben. Prinzipiell ändert sich jedoch dabei an den unten beschriebenen Methoden nichts, da die genutzten Streurichtungen ja erhalten bleiben. Wenn sich die verschiedenen Beiträge zweier Domänen dann in den entsprechenden Azimuten dann nicht mehr überlagern, sollten sich sogar klarere Unterschiede ergeben. Überhaupt keine Veränderungen am Verfahren ergeben sich, wenn – wie bei der Unterscheidung von 3C und 6H – die Unterscheidung in einem

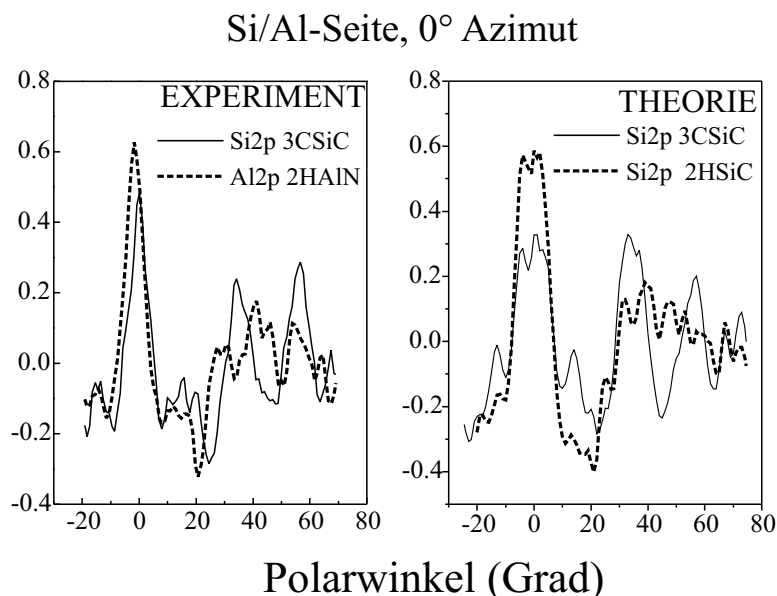


Abb. 6.9: Si2p(Al2p) Polarplots für 2H und 3C (11-20)

Azimut stattfindet, das symmetrisch zu dem der um 180° gedrehten Probe ist.

Wie in Abbildung 6.8 zu sehen ist, kann für die 35°-Richtung ein Unterschied zwischen 3C und 2H erwartet werden. Bei 3C liegt hier eine dichtgepackte Kette von Atomen, während bei 2H sich in dieser Richtung jeweils nur 2 Atome in einem vergleichbaren Abstand befinden. Die in Abschnitt 6.1.1.2 diskutierten Fokussierungseffekte können sich bei 3C voll ausprägen, während bei 2H nur ein einzelnes Si-Atom zur Vorwärtsfokussierung zur Verfügung steht. Im Si2p-Polarscan ist also für 2H weniger Intensität bei 35° zu erwarten, als bei 3C. Es ist auch zu sehen, dass beide Polytypen die 55°-Streurichtung enthalten, wie schon die 35°-Richtung ist diese aber bei 2H wiederum nur durch Si-Paare besetzt und bei 3C deutlich dichter gepackt. 2H besitzt außerdem die Richtung nach 47° hin, die durch zwei Atome gebildet wird, zwischen denen ein Stapelfehler befindet. Dies kann bei 3C nicht vorkommen, bei 47° ist also für 2H ein Vorwärtstreuepeak zu erwarten.

In Abbildung 6.9 erkennt man diesen Peak dann auch in den experimentellen Daten wieder. Für 2H wurden hier Messungen an AlN benutzt, da sich - wie oben erläutert - die beiden Materialien in ihren Streueigenschaften sehr ähneln. Auch in den SSC-Simulationen wird das Vorhandensein des 47°-Peaks bei 2H vorhergesagt, bei 3C wie erwartet nicht. Die beiden dichtgepackten Richtungen zeigen experimentell ebenfalls die oben diskutierten Unterschiede. Bei der 35°-Richtung fällt auf, dass 2H hier sogar ein Minimum besitzt, der Peak erscheint als aufgespalten. Dieser Effekt wird durch Interferenzen von Streuwellen verursacht, welche von Atomen kommen, die in der Nähe der Vorwärtstreurichtung liegen. Dies wird in Abschnitt 6.2.3.3 für Normalemissionseffekte genauer diskutiert. Wegen des geringeren Fokussierungseffekts können solche Interferenzen beim 2H-Polytyp in 35°-Richtung eine größere Wirkung haben.

Die SSC-Simulationen geben die Unterschiede zwischen den beiden Polytypen qualitativ gut

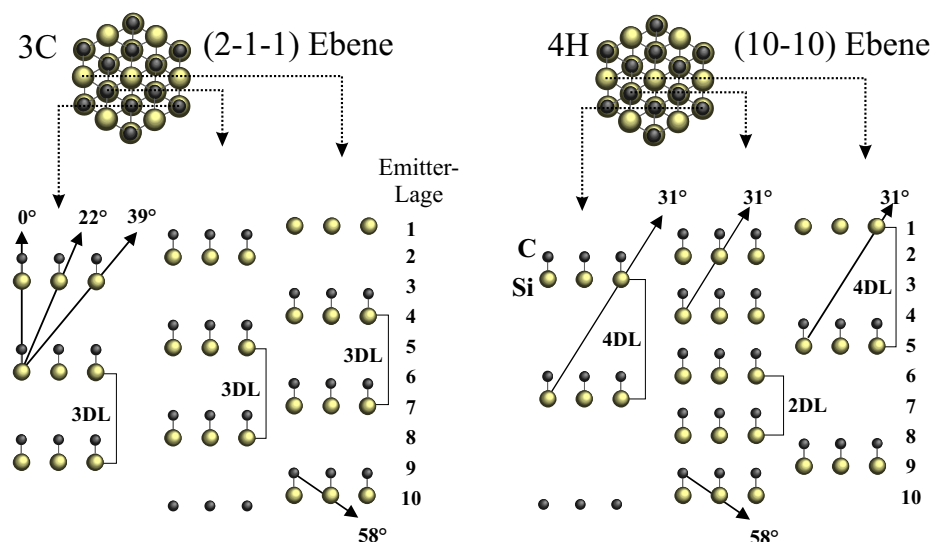


Abb. 6.10: Ebenen zur Unterscheidung von 3C und 4H

wieder. Wegen des Fehlens von 2H SiC-Proben ist aber nur der indirekte Weg über einen Vergleich mit 2H AlN möglich. Die simulierte 2H SiC-Kurve stimmt gut mit der gemessenen 2H AlN-Kurve überein. Für die C-Seite der beiden Polytypen wurden ebenfalls entsprechende Vergleiche durchgeführt, die zu äquivalenten Resultaten führten. Die wesentlichen Unterschiede der Si2p-Emission sind bei den gleichen Winkeln zu beobachten, da sich die Lage der stärker streuenden Si-Atome relativ zueinander nicht ändert. Da die schwächer streuenden Kohlenstoffatome sich jedoch in einer anderen relativen Position befinden, ergeben sich auch Unterschiede in den Polarplots von Si- und C-Seite. Diese sind zur Polaritätsunterscheidung geeignet (Abschnitt 6.2.1.1).

3C-4H Während bei 2H nach jeder Doppellage ein Stapelfehler existiert, sind es bei 4H zwei kubisch gestapelte Doppellagen bis zum Stapelwechsel. In Abbildung 6.10 ist gezeigt, wie sich dies beim Vergleich zu 3C auswirkt. Dort sind die (10-10)-Ebenen gezeichnet, die im Kristall im Winkel von 90° zur (11-20)-Ebene liegen (Abb. 2.6)¹. Die (10-10)-Ebenen schneiden also aus der Stapelfolge einzelne Buchstaben heraus, die mit Si-C-Dimeren besetzt sind. Ein Stapelfehler ist zum Beispiel charakterisiert durch eine ABABA-artige Sequenz mit zwei Doppellagen (DL) Abstand zwischen den A-Positionen, während eine rein kubische Stapelung das Muster ABCABC zeigt, mit drei Doppellagen Abstand zwischen den äquivalenten Positionen. Die Mischung aus kubischen und hexagonalen Stapelungen führt dann zu einer entsprechenden Gewichtung der Vorwärtsstreurichtungen, mit polytypspezifischen Polarscans.

Wegen des Abstandes von 3 DL in 3C SiC entstehen die Vorwärtsstreurichtungen von 22° und 39° (Abb. 6.10). Bei 4H gibt es Abstände von 2 DL und 4 DL, was eine Streurichtung von 31° zur Folge hat. Diese Richtungen sind in einem Si2p-Polarscan als Richtungen vom emittierenden Si-Atom zu umgebenden Si-Atomen sichtbar, wie in Abb. 6.11 gezeigt ist [4]. Die C-Atome sind im Vergleich zu Si schwächere Streuer und beeinflussen den Polarscan entsprechend we-

¹Für 3C ist immer die entsprechende Indizierung mit kubischer Elementarzelle angegeben

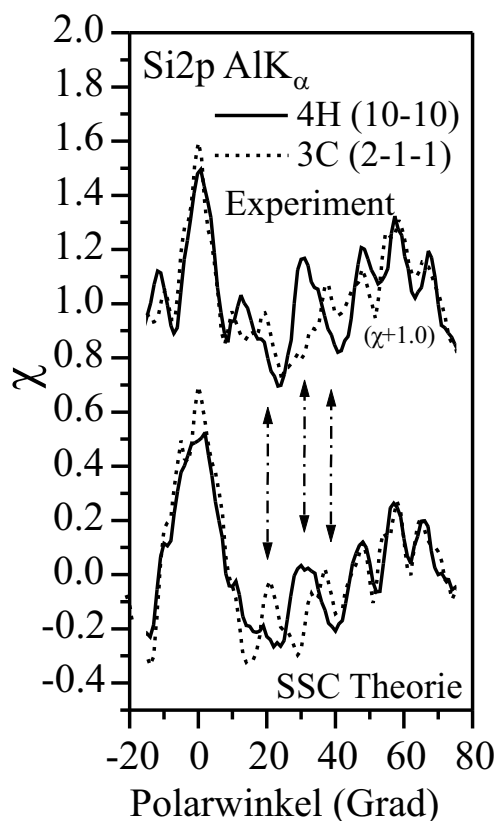


Abb. 6.11: Unterscheidung von 3C und 4H [4]

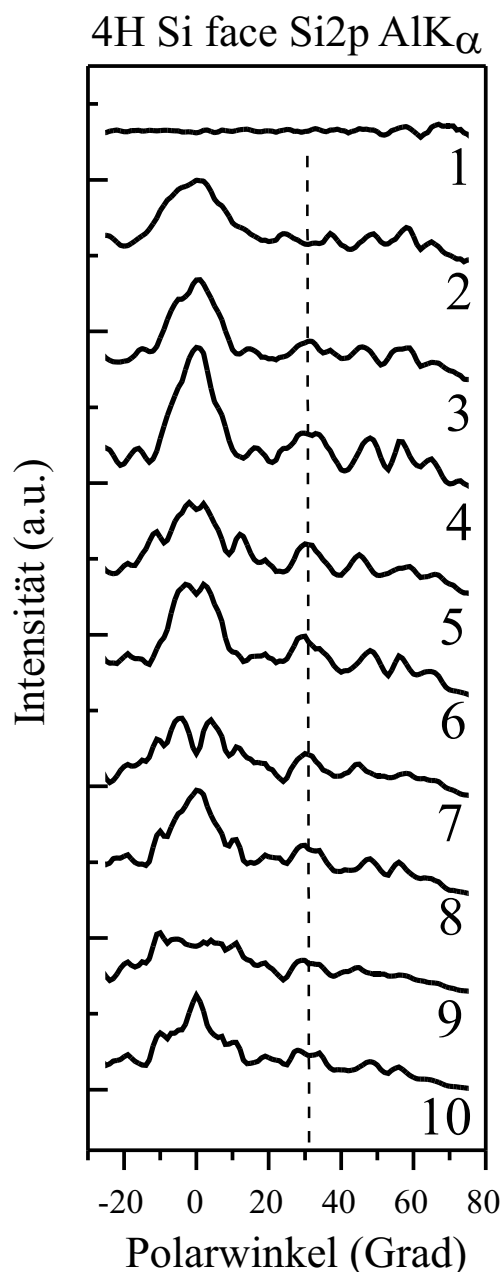


Abb. 6.12: Emittieraufgelöste Beiträge zum Beugungsmuster [4]

niger.

Die gemessene Photoelektronenintensität ist die Summe der Intensitäten aller nichtäquivalenten Emittoren. In der Abbildung 6.12 sind die Beiträge der unabhängigen Si2p-Emittoren bis zu einer Tiefe von 10 DL in der (10-10)-Ebene von 4H SiC gezeigt. Die angegebenen Zahlen entsprechen den Emittoren in Abbildung 6.10. Die Kurven aus Abbildung 6.12 sind also die Grundlage für die 4H-Gesamtkurve in Abbildung 6.11. Da das wichtigste Merkmal für die Unterscheidung von 3C und 4H der 4H-Peak bei 31° Polarwinkel ist, wurde dieses Charakteristikum in seiner tiefenabhängigen Ausprägung näher analysiert. Ein bestimmter Emittor wird einen großen Einfluss auf das Beugungsmuster haben, wenn die von ihm emittierte Intensität einen großen Anteil an der Gesamtintensität stellt. Viel Intensität wird von den Emittoren der obersten Lagen kom-

men, während tiefere Emitter aufgrund der inelastischen Abschwächung der Photoelektronen weniger beitragen. Es wurde gefunden, dass der 9. und 10. Emitter bei 31° Polarwinkel jeweils nur 6% zur aufsummierten Intensität aller Emitter über ihnen beitragen, während der 8. Emitter immer noch 10% dazugibt. Dabei hat man zu beachten, dass die lokale Geometrie einiger Emitter übereinstimmt (zum Beispiel Emitter 4, 6, 8, 10 in 4H, Abb. 6.10). Dann sehen natürlich auch die aufzusummierenden Intensitätskurven sehr ähnlich aus, weil die stärksten Streuer in den gleichen Richtungen liegen. Auf diese Weise verändern die zusätzlichen Intensitäten von weiteren Emitttern die Form der Gesamtkurve nicht unbedingt in gleichem Maße. Der resultierende Effekt ist zum Beispiel darin zu sehen, dass die Veränderungen vom 9. und 10. Emitter nur noch sehr gering sichtbar sind. Um diese Aussage zu quantifizieren, wurden Simulationen durchgeführt. Dabei wurde als Referenzstruktur der berechnete Polarscan eines 50\AA -Clusters benutzt. Dies entspricht einer Tiefe von 20 DL. Der dortige Emitter trägt nur noch 1% zur Gesamtintensität bei, was eine Folge der inelastischen freien Weglänge von etwa 20\AA ist. Mit dem konvergierten 50\AA -Cluster als Referenz wurden Cluster mit steigendem Radius und damit wachsender Emitteranzahl in einer R-Faktor-Analyse verglichen. Nachdem alle Emitter bis zur 10. DL berücksichtigt waren, fiel der R-Faktor R_a auf einen Wert unter 0.01, was als Kriterium für eine ausreichende Konvergenz der Rechnung angesehen werden kann. Bei dieser Clustergröße waren deshalb auch kaum noch Unterschiede zum Referenzmuster des 50\AA -Clusters sichtbar.

In Abbildung 6.12 wird ebenfalls sichtbar, dass die Emitter in der Normalenrichtung unterschiedlich zum Gesamtmuster beitragen. Man sieht, dass die Emitter 5, 7 und 9 aufgespaltene Peaks zeigen mit einer verringerten Intensität in Normalenrichtung, während die Emitter 4, 6, 8 und 10 dort eine demgegenüber erhöhte Intensität zeigen. Der Grund für dieses Verhalten wird aus Abbildung 6.10 sichtbar. Die Emitter mit hoher Intensität in Normalenrichtung liegen in Ebenen mit 2 DL Abstand zwischen den Si-C-Dimeren, während die andere Gruppe von Emitttern sich in Ebenen mit 4 DL Abstand befindet. Der größere Emitter-Streuer-Abstand bewirkt dort den Abfall der in Normalenrichtung gestreuten Intensität. Der Gesamttrend der abnehmenden Intensität in den Kurven ist mit der inelastischen Abschwächung der Photoelektronen mit zunehmender Tiefe zu begründen.

Insgesamt kann man also die Abschätzung angeben, dass die Informationstiefe in SiC bei 31° Polarwinkel bei etwa 8 bis höchstens 10 DL für Photoelektronen von etwa 1keV kinetischer Energie liegt, was auch mit den durch Mehrfachstreurechnungen an Atomketten gewonnenen Resultaten aus Abschnitt 6.1.1.2 harmoniert.

6H-4H Die Unterscheidung der beiden hexagonalen Polytypen 6H und 4H soll am Beispiel der C1s-Emission auf der Siliziumseite demonstriert werden. Wie in Abbildung 6.13 gezeigt ist, eignet sich dazu die (11-20)-Ebene. Die experimentellen Daten zeigen deutliche Unterschiede bei einem Polarwinkel von etwa 40° . Wie man im Einschub zu Abbildung 6.13 sieht, zeichnen sich die C-Atome am ersten Stapelfehler des S3-terminierten 6H durch Vorwärtsstreurichtun-

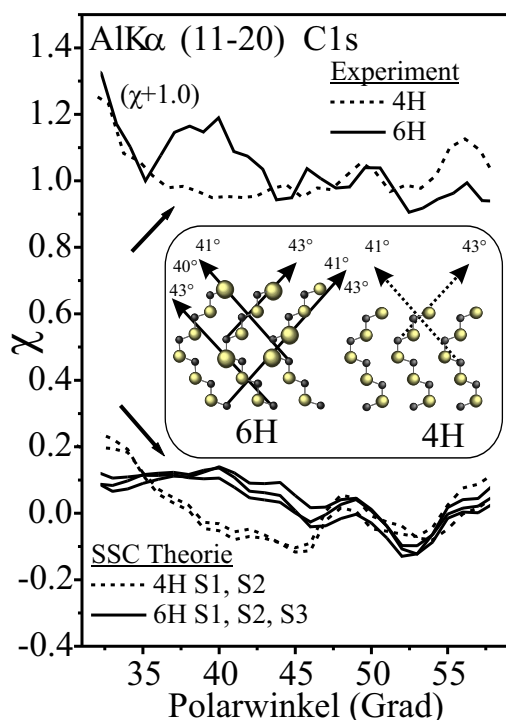


Abb. 6.13: Einfluss von Stapelterminierungen auf die Unterscheidung zwischen 6H und 4H [4]

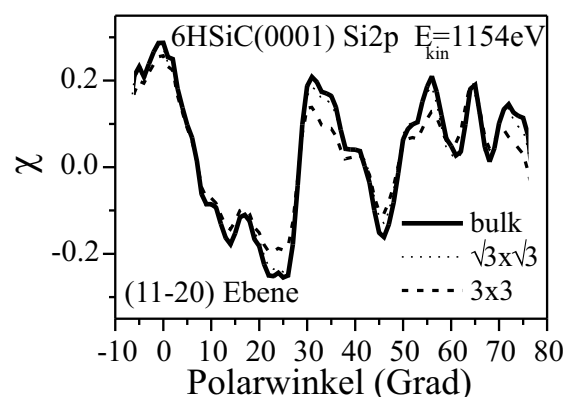


Abb. 6.14: Einfluss von Oberflächenrekonstruktionen auf das Beugungsmuster [4]

gen von 41° und 43° an Siliziumatomen aus, welche zur Hervorhebung größer gezeichnet sind. Diese Streurichtungen sind typisch für die Stapelung von drei kubischen DL in 6H SiC. Im 4H-Polytyp sind diese Richtungen nicht mit nahen Streuatomen besetzt, weil nur zwei kubische DL vorhanden sind. Dieser Unterschied muss also die erhöhte C1s-Intensität bei 6H-SiC in der Nähe von 40° bewirken. Dies ist nochmal durch Pfeile in Abbildung 6.13 gekennzeichnet. Die Stapelterminierung von 6H und 4H beeinflusst diese Unterscheidungsmöglichkeit nicht wesentlich, wie in den Simulationen in Abbildung 6.13 für die beiden Polytypen gezeigt ist. Auch mit einer S2 oder S1-Terminierung wird die Vorwärtsstreurichtung durch die tiefer liegende Stapelsequenz von 6H aufrechterhalten. Die Unterschiede zwischen den einzelnen Terminierungen sind deutlich kleiner, als die zwischen den Polytypen selbst. Eine Unterscheidung von 6H und 4H ist also unabhängig von der vorliegenden Stapelterminierung möglich.

Als weitere Möglichkeit, welche die Polytypunterscheidung verfälschen könnte, kommt die Existenz von Oberflächenrekonstruktionen auf der Probe in Frage. Dieser Einfluss kann durch die definierte Erzeugung von Oberflächenrekonstruktionen konstant gehalten werden. Durch SSC-Simulationen soll im folgenden untersucht werden, wie sich die durch MgK_α angeregten Si2p-Polarscans von 6H SiC(0001) bei verschiedenen Oberflächenrekonstruktionen verhalten. Dazu wurden die (11-20)-Ebenen ausgewählt und die (3×3) und $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ Oberflächenrekonstruktionen betrachtet. Diese wurden nach veröffentlichten Strukturmodellen [126, 230] simuliert, wobei für die (3×3) -Rekonstruktion die Einheitszelle um den Faktor 9 vergrößert werden musste, um alle nichtäquivalenten Emittoren zu berücksichtigen. Die damit eintretende Erhöhung des Rechenaufwandes wäre mit Mehrfachstreusimulationen nur schwer zu beherr-

schen.

In Abbildung 6.14 kann man einen Vergleich der simulierten Polarscans sehen. Die Peakpositionen und relativen Peakhöhen werden gegenüber dem ideal S3-terminierten Substrat durch die Oberflächenrekonstruktionen nicht verändert. Die theoretische Modulation der (3×3) -Kurve ist etwas geringer als die der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Oberfläche. Dies kann damit erklärt werden, dass die (3×3) -Rekonstruktion durch mehr Silizium gebildet wird (1.4 Monolagen) als die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion (1/3 Monolage). Die Siliziumatome der Oberflächenrekonstruktion befinden sich teilweise an Positionen, die sich von der Symmetrie des Volumenkristalls unterscheiden und somit die Intensität in den Beugungsmustern auf größere Bereiche verteilen. Dies hat den größeren Intensitätsabfall bei der (3×3) -Rekonstruktion zur Folge. Es kann aus den Simulationen der Schluss gezogen werden, dass der Polarscan der Oberfläche mit $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion praktisch nicht von der ideal terminierten Oberfläche unterschieden werden kann. Der R-Faktor R_a für diese beiden Kurven liegt bei 0.01, was weit genug unter den üblichen experimentellen Variationen liegt. Man kann also den Schluss ziehen, dass Veränderungen der Volumenstruktur auch ohne Berücksichtigung einer $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Oberflächenrekonstruktion simuliert werden können. Das Vorhandensein einer (3×3) -Rekonstruktion hat den Effekt der Verringerung der absoluten Intensitätsvariationen ohne Veränderung der Peakpositionen. Diese Folgerungen unterstützen die Ergebnisse von Simon *et al.* [138], welche durch Messungen an 6H SiC zeigten, dass bei MgK_α -Anregung das Signal der Oberflächenrekonstruktion vernachlässigt werden kann. Wir können somit die Beobachtungen von King *et al.* [139] nicht unterstützen, die große Variationen in XPD-Mustern von Si2p und C1s an $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ und (3×3) -Rekonstruktionen beobachtet haben.

6H-3C Die Differenzierung zwischen 3C und 6H ist für praktische Anwendungen von besonderer Wichtigkeit. 6H besteht aus einer Folge von jeweils drei kubischen Doppellagen, die durch einen Stapelfehler unterbrochen sind (siehe Abbildung 2.6). Die Elementarzelle von 3C besteht aus drei gleich gestapelten Doppellagen. Bei idealer Volumenterminierung und bei Vorliegen von jeweils zwei Domänen stimmen also die Beiträge der ersten drei Doppellagen zum Beugungsmuster überein und es liegt jeweils eine sechszählige Symmetrie vor. Es kann also erwartet werden, dass die Unterschiede der XPD-Muster zwischen diesen beiden Polytypen gering sind.

Betrachtet man die (10-10)-Ebene (Azimut= 30°), so offenbaren sich jedoch die entscheidenden Differenzen zwischen den beiden Polytypen. In Abbildung 6.15 sind Schnitte entlang der betrachteten Azimutrichtung von 30° gezeigt. 3C enthält dabei nur eine Sorte von Schnittebenen, die alle zu den gleichen Streurichtungen führen. 6H enthält zusätzlich zu der auch bei 3C vorhandenen Ebene eine weitere Sorte. Diese Ebene schneidet genau entlang des hexagonalen Stapelfehlers, ist also typisch für hexagonale Polytypen. Diese „hexagonalen Ebenen“ enthalten die kennzeichnende Streurichtung von 31° (Abb. 6.15), welche bei 3C nicht vorhanden ist. Es wird also erwartet, dass die beiden Polytypen bei 31° in der (10-10)-Ebene im Beugungsmuster

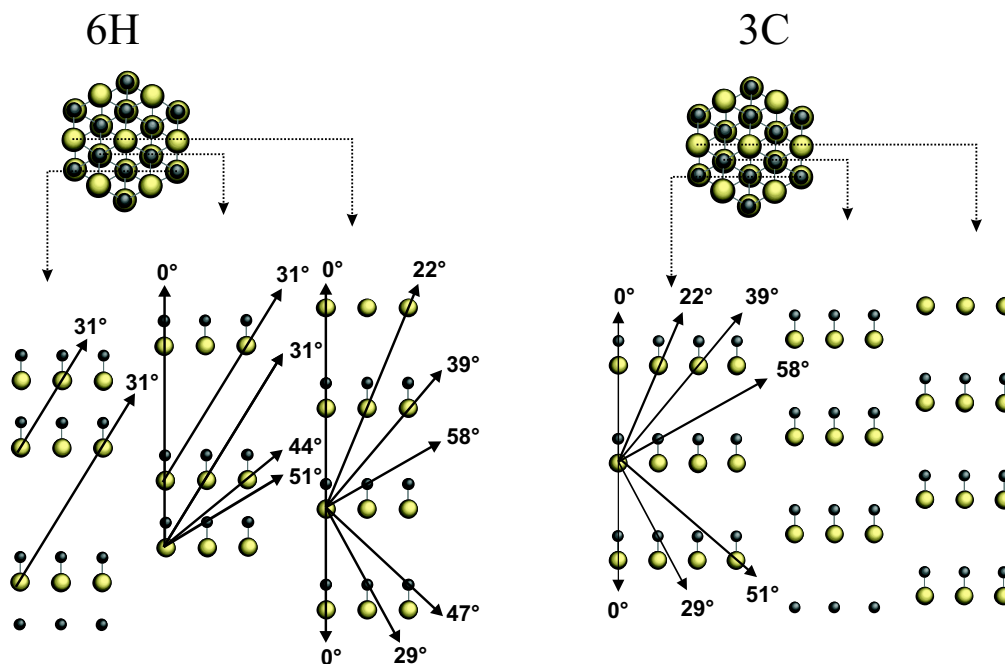


Abb. 6.15: Atomanordnung in der 3C (2-1-1) und der 6H (10-10)-Ebene

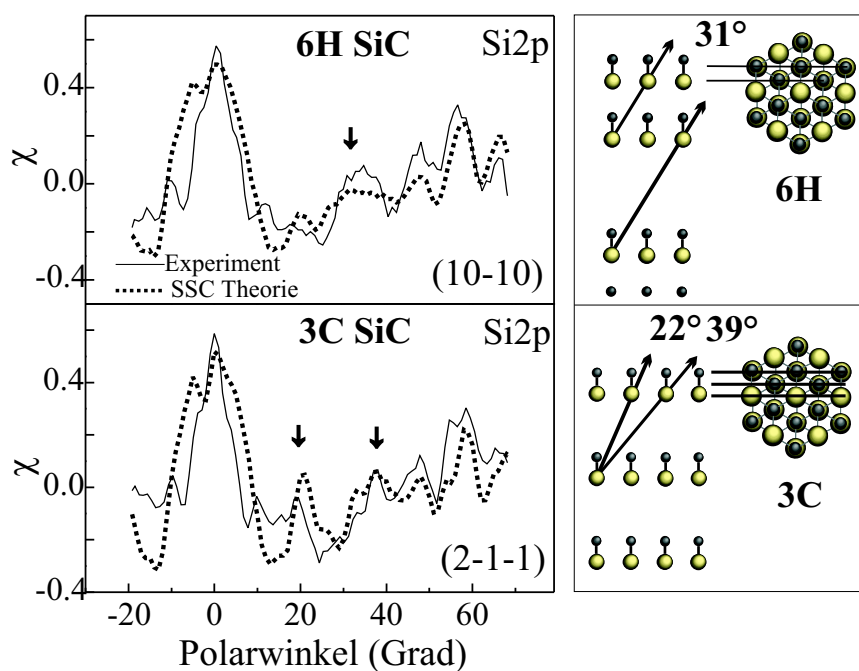


Abb. 6.16: Polarplot von Si2p in der 3C (2-1-1) und der 6H (10-10)-Ebene, AlK_{α} -Anregung [2]

die entscheidenden Unterschiede aufweisen.

Die Abbildung 6.16 bestätigt diese Erwartung. Auf der Si-Seite weist 6H SiC im Bereich von 30° bis 35° eine etwas höhere Intensität auf, als 3C. Die Streurichtung von 22° ist in 3C dreimal so oft enthalten wie in 6H. Wie man sowohl in der Theorie, als auch im Experiment erkennt, weist 3C deshalb dort einen deutlich höheren Peak als 6H auf.

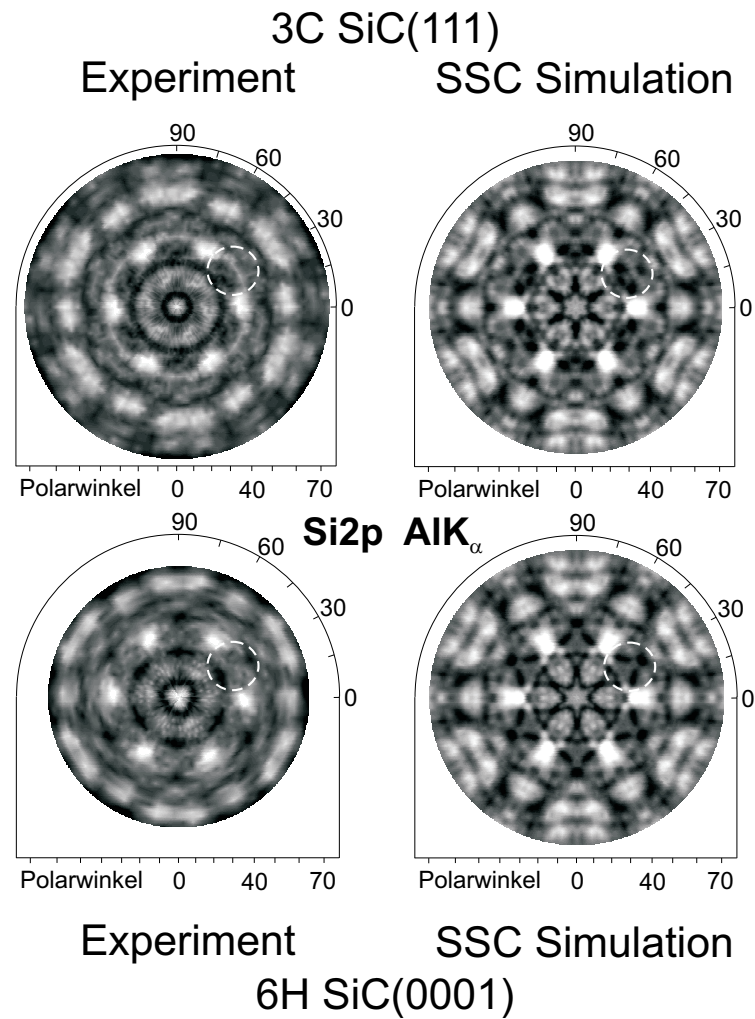


Abb. 6.17: Beugungsmuster von 3C und 6H auf der Siliziumseite, Si2p

<i>R_a</i> im Bereich -15° ... 70°					<i>R_a</i> im Bereich 17° ... 40°				
	3C-C exp	3C-Si exp	6H-C exp	6H-Si exp		3C-C exp	3C-Si exp	6H-C exp	6H-Si exp
3C-C th	[0.27]	0.54	0.34	0.53	3C-C th	[0.32]	0.94	0.61	0.87
3C-Si th	0.51	[0.23]	[0.28]	[0.21]	3C-Si th	0.79	[0.26]	0.43	0.32
6H-C th	0.55	0.51	0.34	0.42	6H-C th	1.04	0.64	[0.20]	0.27
6H-Si th	0.64	0.32	0.33	0.24	6H-Si th	1.05	0.41	0.35	[0.15]

Tabelle 6.2: R-Faktor-Vergleiche zur Unterscheidung von 3C SiC und 6H SiC für zwei Polarwinkelintervalle. Si2p in der 3C SiC(2-1-1) und der 6H SiC(10-10)-Ebene, AlK_α-Anregung

Wie sehr sich die Beugungsmuster von 3C und 6H ähneln, ist für Si2p auf der Si-Seite in Abb. 6.17 durch Beugungsmuster dargestellt. Die Messungen stimmen mit den Simulationen gut überein. Die oben diskutierten Bereiche, die für die Unterscheidung geeignet sind, wurden durch Kreise gekennzeichnet. Durch einfaches Betrachten der vollen Beugungsmuster wäre es extrem schwer, eine Unterscheidung zwischen 3C und 6H vorzunehmen. Das unterstreicht die Wichtigkeit der genauen Analyse der Merkmale in den Polarplots.

Ein quantitativer Vergleich ist mittels einer R-Faktor-Analyse möglich. In Tabelle 6.2 sind dazu die Ergebnisse des Vergleichs simulierter und experimenteller Kurven in zwei Polarwinkelintervallen gezeigt. Das große Intervall von -15° bis 70 Grad ermöglicht keine eindeutige Zuordnung

von Polytyp und Polarität. Dies liegt darin begründet, dass dieses Intervall Bereiche enthält, in denen sich die Polytypen wenig unterscheiden ($>40^\circ$) und wo zusätzlich die SSC-Simulationen wegen des Einflusses der Mehrfachstreuung größere Unterschiede zum Experiment ergeben (Normalemission). Beschränkt man sich jedoch auf den Winkelbereich, in dem die Polytypen die größten Unterschiede aufweisen, so ist eine eindeutige Zuordnung von Polytyp und Polarität mittels eines R-Faktor-Vergleichs möglich. Dies ist im unteren Teil von Tabelle 6.2 gezeigt, wo sich im Bereich von 17° bis 40° Polarwinkel jeweils für das korrekte Paar von Experiment und Theorie ein Minimum des R-Faktors R_a ergibt [231].

Damit kann zusammenfassend gesagt werden, dass die Unterscheidung von 3C und 6H anhand der Si2p-Beugungsintensität im Polarwinkelbereich von etwa 17° bis 40° in der 30° -Azimutrichtung (10-10) bzw. (2-1-1) eindeutig möglich ist.

6.2.2.2 Polytypbestimmung mit ECP

Die Möglichkeit, die verschiedenen SiC-Polytypen über ihre Elektronenchannellingmuster zu identifizieren, wurde in der experimentellen Arbeit von Levchuk *et al.* [232] beschrieben. Darin werden experimentelle Muster für einer Reihe von Polytypen gezeigt, die bei einer Energie von 9.25keV aufgenommen wurden. Für die Analyse ultradünner Schichten, die mit MBE gewachsen wurde, nutzten Schröter *et al.* [26] ähnliche Muster bei niedrigeren Energien bis unter 3keV Elektronenenergie. Damit konnte die Möglichkeit der Polytypunterscheidung ultradünner Schichten mittels ECP experimentell demonstriert werden. Simulationen, welche die beobachteten Effekte erklären, sind jedoch bis zu der vorliegenden Arbeit nicht erfolgt. In diesem Abschnitt werden dazu einige Ergebnisse vorgestellt [6].

3C Zunächst soll am Beispiel von 3C SiC gezeigt werden, welche Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulationen mittels der im Theorieteil beschriebenen Blochwellenmodelle für die Elektronenchannellingmuster erreicht werden kann.

Dazu ist in Abbildung 6.18 ein bei 4keV gemessenes ECP von 3C SiC(111) gezeigt. Die beobachteten hexagonalen Bereiche werden darin von den $\{0\ 2\ 2\}$ Reflexionen eingeschlossen und haben einen Durchmesser von etwa 5 Grad. Weil der Elektronenstrahl über die gesamte Probenoberfläche gerastert wird, ist zusammen mit dem durch die Beugung verursachten Kontrast auch topographischer Kontrast von Unebenheiten auf der Oberfläche zu erkennen. Dies ist durch einen Pfeil gekennzeichnet. Dem Experiment sind eine kinematische Simulation und zwei dynamische Simulationen gegenübergestellt. Die kinematische Simulation zeigt die Lage der Kikuchi-Linien in Übereinstimmung mit dem Experiment. Sie kann aber die Intensitätsverteilung nicht erklären. Diese wird durch die beiden dynamischen Simulationen sehr gut wiedergegeben. Es handelt sich dabei jeweils um eine Simulation im Rahmen der „forward-backward-approximation“ (FBA, Abschnitt 4.3.3.2) und im Rahmen des Blochwellenmodells von Rossouw *et al.* (Abschnitt 4.3.3.1). Für die Simulationen mussten etwa 70 reflektierende Gitterebenen benutzt werden, um die dargestellte Übereinstimmung mit dem Experiment zu erreichen.

Wie zu sehen ist, liefern beide Simulationsmodelle sehr ähnliche Resultate für die relative Intensitätsverteilung im Elektronenchannellingmuster. Dies machte es möglich, für den folgenden Vergleich von 4H und 6H das FBA-Modell zu benutzen, da die dadurch erreichte Einsparung an Rechenzeit enorm ist. Wie der Vergleich der für die Modelle zentralen Formeln 4.48 und 4.50 zeigt, ist mit der Anzahl j der Blochwellen und Reflexe der Rechenaufwand proportional zu j^2 im FBA-Modell gegenüber j^4 im Rossouw-Modell mit Blochwelleninterferenztermen.

6H-4H Als Beispiel zur Polytypuntercheidung soll die Differenzierung zwischen 4H und 6H SiC demonstriert werden. Dazu sind in Abbildung 6.19 jeweils experimentelle und simulierte Channellingmuster für 4H und 6H bei 2850eV gezeigt. 4H zeigt bei dieser Energie ein typisches „Steuerradmuster“ mit einem deutlichen breiten Intensitätsmaximum im Zentrum und sechs Nebenmaxima in den Ecken des hexagonalen Beobachtungsbereichs, der von den $\{11-20\}$ -Reflexionen um die $[0001]$ -Richtung eingeschlossen wird und analog dem bei 3C gezeigten Bereich ist. Demgegenüber besitzt 6H ein deutlich schmaleres Intensitätsmaximum in der Zonenachsenrichtung, mit einem Muster aus dunklen Bereichen und einer Gruppe von kleineren Maxima in hexagonaler Anordnung. Diese Merkmale werden durch die Simulationen mittels des FBA-Modells gut reproduziert, so dass die experimentelle Polytypuntercheidung mittels ECP durch die Simulationen theoretisch gestützt wird. Für die Simulationen wurden etwa 50 reflektierende Gitterebenen genutzt.

Die polytypspezifischen Intensitätsvariationen werden durch Reflexe an Gitterebenen verursacht, deren reziproke Gittervektoren (hkl) nicht senkrecht zur Zonenachsenrichtung stehen, also außerhalb der nullten Lauezone liegen, die im Falle der $[001]$ -Zonenachse durch die Bedingung $l = 0$ definiert ist. Die höheren Lauezonen (HOLZ, higher order laue zones) tragen Informationen über die Periodizität in Zonenachsenrichtung, die ja gerade das differenzierende Merkmal der verschiedenen Polytypen ist. Eine solche Periodizität kann in den Ebenen

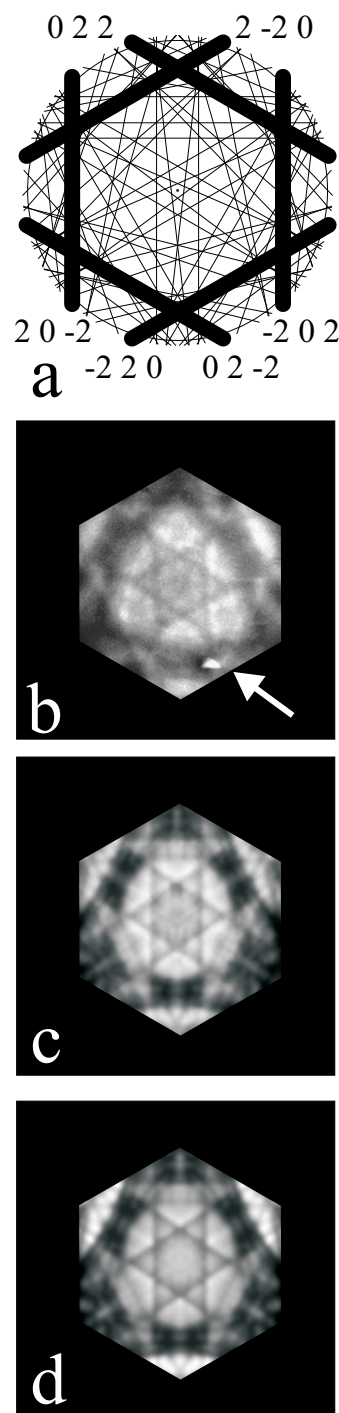


Abb. 6.18: Elektronenchannellingmuster von 3C SiC (111) bei 4keV [6]. (a) Kinematische Simulation, (b) Experiment, (c) FBA Simulation, (d) Rossouw-Modell [6]

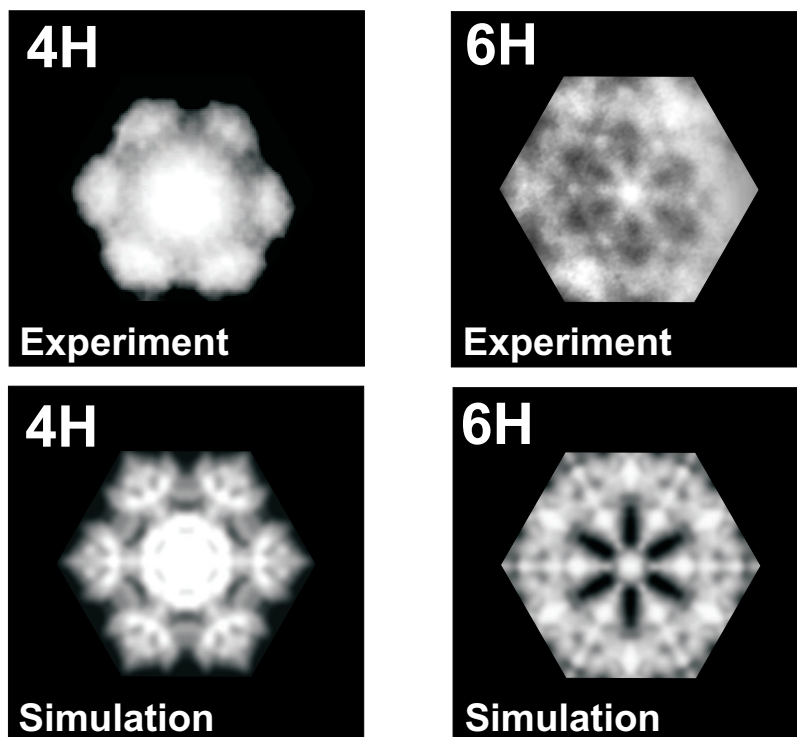


Abb. 6.19: Unterscheidung von 4H und 6H SiC mittels Elektronenchannellingmuster bei 2850eV. Experiment und FBA-Simulation. [6]

der nullten Lauezone, die senkrecht zur Oberflächenebene liegen, nicht repräsentiert sein. Effekte der HOLZ-Reflexe wurden auch in den mit den Elektronenchannellingmustern eng verwandten Elektronenrückstreumustern zur Einheitszellengrößenbestimmung genutzt [92]. Die starken dynamischen Wechselwirkungen der reflektierenden Gitterebenen in der Nähe der $[0001]$ -Zonenachse führen zu deutlichen Abweichungen der Intensitätsverteilung vom Bild der sich schneidenden geraden Kikuchi-Linien [170] und damit zu den beobachteten komplexen Intensitätsverteilungen für die verschiedenen Polytypen.

6.2.2.3 Polytypbestimmung mit LEED

Die Polytypunterscheidung durch I-V-Kurven im LEED wurde in verschiedenen Veröffentlichungen diskutiert. Eine frühe Untersuchung von Kaplan [107] kam zu dem Schluss, dass mit 15..300eV-Elektronen keine Differenzierung von 6H und 3C SiC möglich ist und damit Schwierigkeiten bei der Polytypidentifizierung bestehen würden. Die umfangreichen LEED-Untersuchungen der Erlanger Gruppe führten dann zu dem Ergebnis, dass die Polytypen, wenn überhaupt, nur durch eine charakteristische Morphologie ihrer Stapelterminierungen unterschieden werden können. Verschiedene Polytypen, die aber mit der gleichen Terminierung vorliegen (z. B. 6H-S2 und 4H-S2), haben sehr ähnliche LEED-Kurven [130], ebenso S3-6H und S4-6H. Weiterhin konnten bei der Analyse der (3×3) -Oberflächenrekonstruktion keine polytypabhängigen Modifikationen gefunden werden [126]. Insgesamt kann festgehalten werden, dass wegen der geringen Tiefenempfindlichkeit von LEED eine polytypspezifische Analyse nur in-

direkt über spezifische Stapelterminierungen und ihrer Mischungen möglich ist [127, 131].

Um die Tiefenempfindlichkeit von LEED zu demonstrieren, wurden in dieser Arbeit zusätzliche Simulationen durchgeführt, die die Nachweisbarkeit eines Stapelfehlers auf der C-Seite einer SiC-Oberfläche analysieren sollen. Dabei wird die I-V-Kurve eines perfekten kubischen Substrats jeweils mit derjenigen verglichen, die einem Stapelfehler in einer festgelegten Tiefe entspricht. Die Oberfläche soll nur eine einzige Terminierung besitzen, um die prinzipielle Grenze der Methode zu zeigen. Die Strukturen wurden mit den Werten für den Volumenkristall simuliert. Das SATLEED-Paket [146] wurde benutzt, um die I-V-Kurven der Reflexe (1,0), (0,1), (1,1), (2,0) und (0,2) im für LEED gut zugänglichen Energiebereich von 200eV bis 450eV zu simulieren und mittels des Pendry-

R-Faktors R_{Pendry} zu vergleichen. Die Energien über 200eV wurden gewählt, weil der mögliche Einfluss von Oberflächenrekonstruktionen nicht in Betracht gezogen werden soll [130]. Das reelle innere Potential V_{0r} wurde als anpassbarer Parameter behandelt, der imaginäre Anteil V_{0i} wurde als -4.0eV [130] angenommen. Es wurden sechs veränderliche Doppellagen auf einem kubischen Volumenkristall betrachtet. In Tabelle 6.20 sind die Ergebnisse des R-Faktor-Vergleichs gezeigt. Der Stapelfehler entspricht in der ersten Spalte der Stelle, an der das Vorzeichen wechselt. Eine gute Übereinstimmung von Simulation und Experiment wird häufig bei einem Pendry-R-Faktor von etwa 0.2 angesetzt. Strukturmodelle, die sich weniger als um diesen Wert unterscheiden, können also nicht mehr unterschieden werden. Dies ist in Tabelle 6.20 für die Terminierungen S6 und S5 der Fall. Bei einer Lage des Stapelfehlers in einer Tiefe von 4 Doppellagen liegt der R-Faktor bei 0.18. Hier scheint also eine prinzipielle Grenze der Nachweisbarkeit erreicht. Stapelfehler in flacheren Positionen sind deutlich von der Referenzstruktur zu unterscheiden, wie auch die jeweils um 180° gedrehten Terminierungen, was bei einer einheitlich terminierten Probe einer korrekten Zuordnung von (1,0) und (0,1)-Reflexen entspricht. Insgesamt reihen sich diese Ergebnisse in die von [130] ein, wo für eine (0001) SiC-Oberfläche die Grenze der Detektierbarkeit des Stapelfehlers ebenfalls bei maximal 4 Doppellagen angegeben wird.

Stapelfolge	Bezeichnung	R_{Pendry}
+++++ < + >	3C	0.00
+++++ < - >	S6	0.04
+++++ < - >	S5	0.09
++++- < - >	S4	0.18
+++-- < - >	S3	0.34
++--- < - >	S2	0.56
+---- < - >	S1	0.79
----- < - >	3C*	0.83
-++++ < + >	S1*	0.57
--+++ < + >	S2*	0.88
---++ < + >	S3*	0.89
----+ < + >	S4*	0.89
-----+ < + >	S5*	0.85
----- < + >	S6*	0.83

Abb. 6.20: Ergebnisse des R-Faktor-Vergleichs für einen Stapelfehler in einer ansonsten kubischen SiC(000-1)-Schicht

6.2.2.4 Polytypbestimmung mit RHEED

Für die Anwendung während des Wachstums von SiC-Schichten wäre es wichtig, die wachsenden Polytypen direkt auf dem RHEED-Schirm unterscheiden zu können. Das Beugungsmuster der elastisch gestreuten Elektronen basiert auf der zweidimensionalen Translationssymmetrie der Oberfläche. Diese ist für alle Polytypen die gleiche. Unterschiede in der Stapelfolge, also der Atomanordnung senkrecht zur Oberfläche, spiegeln sich wie im Falle von LEED in Intensitätsvariationen der durch die Oberflächensymmetrie vorgegebenen Beugungsmaxima wieder. Diese Beugungsmaxima bestehen im Falle von RHEED wegen des streifenden Einfalls aus Projektionen der Gitterstäbe des reziproken Gitters auf den Beobachtungsschirm. Die Intensitätsvariationen entlang der Gitterstäbe sind im allgemeinen durch dynamische Beugungseffekte beeinflusst.

Während die Beugungsmuster der elastisch gestreuten Elektronen also prinzipiell Einflüsse der oberen Stapelfolgen des Kristalls enthalten sollten, wird ihre Intensitätsverteilung aber in Ähnlichkeit zu LEED sehr stark von den Veränderungen der unmittelbaren Oberfläche beeinflusst. So scheint es schwierig, die in kinematischen Simulationen vorhergesagten Intensitätsvariationen entlang der reziproken Gitterstäbe für unterschiedliche Polytypen [229] auch zuverlässig experimentell nachweisen zu können. Eine quantitative Auswertung ist außerdem durch den Fakt erschwert, dass eine übliche RHEED-Anordnung keine Energiefilterung vor dem Schirm enthält, wie das bei LEED der Fall ist. In diesen Fällen überlagern sich die Effekte der elastisch und der inelastisch gestreuten Elektronen.

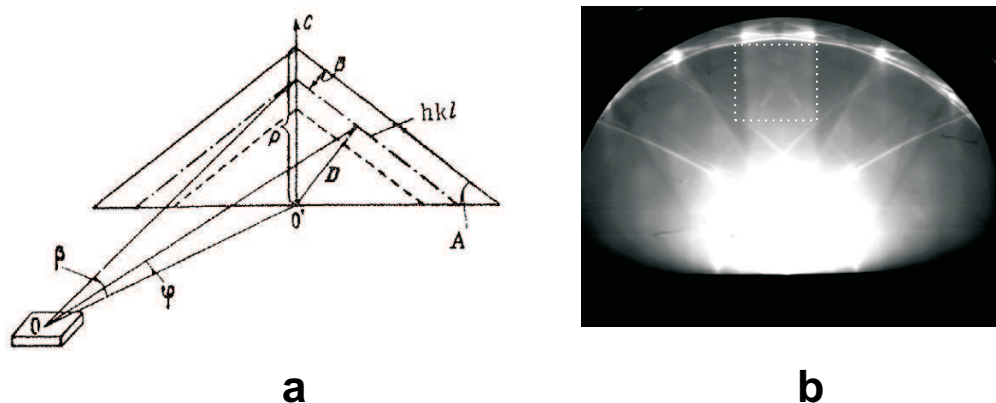


Abb. 6.21: (a) Koordinatensystem zur Vermessung von Kikuchilinen auf dem RHEED-Schirm [233] (b) RHEED-Muster einer 6H SiC(0001)-Oberfläche mit gekennzeichnetem Bereich für die Polytypenunterscheidung, Azimutrichtung [2,1,0].

Einen weiteren Ansatzpunkt bilden deshalb gerade die Beugungseffekte der inelastisch gestreuten Elektronen. Die dabei entstehenden Kikuchi-Linien haben den Vorteil, dass man sich auf *Linienpositionen* und *Linien Schnittpunkte* beziehen kann und nicht von der Messung von Intensitäten über einem ungenau bekannten Untergrund abhängig ist. Die prinzipiellen Grundlagen dafür haben Zhukova *et al.* [233, 234] gelegt, indem sie die Polytypabhängigkeit von Kikuchi-

Linien in RHEED-Experimenten aufzeigten und explizite Formeln für Linienabstände angaben. Im Koordinatensystem von Abbildung 6.21 misst man den Abstand P_{hkl} des Schnittpunktes einer zur Ebene (hkl) gehörenden Kikuchilinie mit der Projektion der c-Achse auf dem Schirm. Für diesen gilt [233]:

$$P_{hkl} = L \tan \beta_{hkl} + B_{hkl} / \cos \alpha_{hkl} \quad (6.1)$$

mit $2B_{hkl} = (1/d_{hkl})L\lambda(1 + \tan^2 \varphi)$ und $\tan \alpha = c/al$, wenn man im Azimut $[2,1,0]$ beobachtet. Dabei ist L der Abstand Probe-Schirm, λ die Elektronenwellenlänge. Die Gitterkonstanten sind a und c , wobei $c = lc_i$ in einer für alle Polytypen einheitlichen Weise als Vielfaches l eines Doppellagenabstandes $c_i = 2.52\text{\AA}$ gemessen wird. Die Kikuchi-Linie befindet sich im Abstand B_{hkl} von der Projektion der zugehörigen Gitterebene mit Netzebenenabstand d_{hkl} , die mit der Richtung des einfallenden Strahl wie in Abbildung 6.21a den Winkel φ bildet.

Nur Linien mit $h-k \neq 3n$ sind für eine Änderung der Stapelfolge empfindlich [233]. Besonders zur Polytypenunterscheidung im RHEED geeignet sind dabei die Linien, die zur ersten Gruppe von Reflexen mit $h^2 + hk + k^2 = 1$ gehören:

$$(h, k) = (0, 1), (1, 0), (1, -1), (0, -1), (-1, 0), (-1, 1).$$

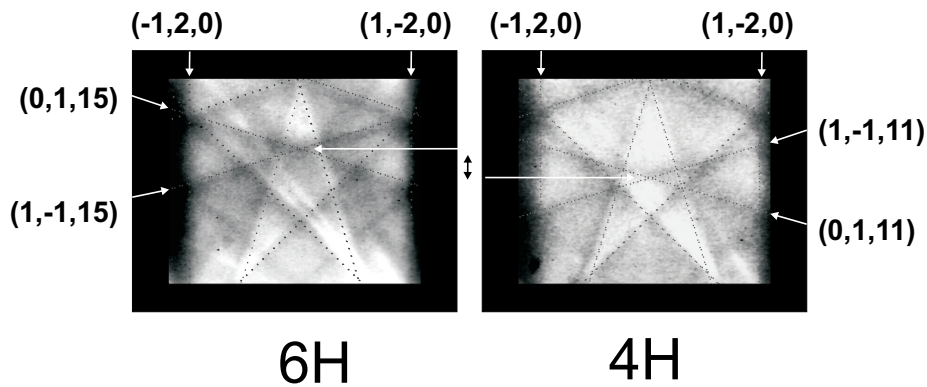


Abb. 6.22: Unterscheidung von 4H und 6H SiC mittels Kikuchi-Linien im RHEED bei 35kV.

In [233] wurden als Beispiele RHEED-Muster von 6H und 15R bei 75kV Elektronenenergie analysiert. Als eine weitere Anwendung soll nun die Unterscheidung von 4H, 6H und 3C demonstriert werden. In Abbildung 6.21b ist eine RHEED-Aufnahme von 6H SiC(0001) gezeigt, die bei 35kV an der in der Arbeitsgruppe zur Verfügung stehenden SiC-MBE-Anlage gemacht wurde. Wegen der begrenzten Dynamik der Videokamera musste der zentrale Bereich übersteuert aufgenommen werden. Es ist auch gezeigt, wo die zur Polytypunterscheidung nutzbaren Linien liegen, die in Abbildung 6.22 am Beispiel von 4H und 6H in genaueren Aufnahmen gezeigt sind. Die dort eingezeichneten Linien entsprechen der Lage der Kikuchi-Linien nach dem kinematischen Modell und wurden mit dem Programm „Electron Diffraction“ [217] gezeichnet. Man erkennt wie sich die Lage der Linien $(1,-1,11)$ und $(0,1,11)$ bei 4H sowie $(1,-1,16)$ und $(0,1,16)$ bei 6H relativ zu den bei beiden Polytypen identischen Linien verändert. Dies entspricht einer Veränderung von P in Gleichung 6.1.

Vom Standpunkt der Anwendung aus ist es überaus interessant, ob eine wachsende kubische 3C-

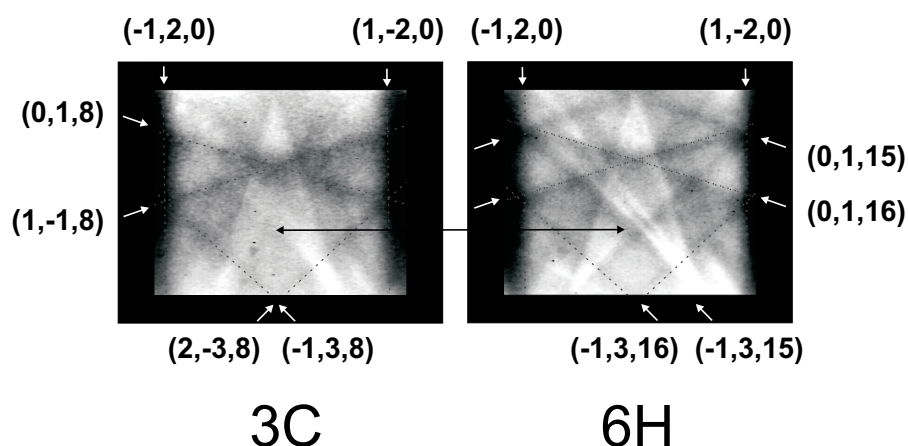


Abb. 6.23: Unterscheidung von 3C und 6H SiC mittels Kikuchi-Linien im RHEED bei 35kV. Hexagonales Koordinatensystem mit $c=7.55\text{\AA}$ für 3C

Schicht auf einem 6H-Substrat im RHEED detektiert werden kann. Dabei muss die Möglichkeit in Betracht gezogen werden, dass die kubische Schicht effektiv in zwei um 180° gedrehten Domänen vorliegt, was durch Zwillingwachstum oder durch die Stapelterminierung des Substrats hervorgerufen werden kann. Dies führt dann zu einer sechszähligen Symmetrie der Beugungsmuster, so dass die Dreizähligkeit des kubischen Kristalls um die (111) -Zonenachse nicht mehr als potentiell Unterscheidungskriterium genutzt werden kann.

Die in [233] erwähnten Reflexe zur Polytypenunterscheidung sind ganz analog auch zur Differenzierung von 3C und 6H geeignet. Dazu kann man sich klar machen, dass in diesem Fall eine Verdopplung der Gitterkonstante im Ortsraum eine Halbierung der Länge eines entsprechenden reziproken Gittervektors bedeutet. Die entsprechenden reziproken Gittervektoren liegen bei 6H also doppelt so dicht, wie bei 3C. Deshalb werden bei einem Rückstreumuster von 6H zusätzliche Reflexe erwartet, die bei 3C nicht vorhanden sind.

In Abbildung 6.23 sind dazu im Vergleich zwei RHEED-Muster gezeigt, die von einer 3C-Schicht und einem 6H-Substrat gemacht worden sind. Es sind deutlich die zusätzlichen Linien bei 6H zu erkennen. Das 3C-Muster ist in einem hexagonalen Koordinatensystem mit einer c -Achse von 7.55\AA indiziert, um die systematischen Veränderungen auch an den Miller-Indizes sehen zu können. Bei 6H ist der l -Index einer mit 3C gemeinsamen (hkl) -Linie wegen der doppelten c -Achsenlänge auch doppelt so groß wie bei 3C. Daneben gibt es zusätzliche Linien mit ungeradem l , die keine Entsprechung bei 3C haben. In der $[2,1,0]$ -Richtung besitzt das Muster von 3C eine Spiegelsymmetrie, egal, ob es sich um eine zweidomänige Schicht handelt oder nicht. Die Unterscheidung von 3C und 6H ist damit unabhängig von Symmetriebeobachtungen möglich. Für Symmetrieaussagen in genaueren Analysen der 3C-Schicht können dann zusätzlich weitere Azimute beobachtet werden.

6.2.3 Anwendungsbeispiele

6.2.3.1 Wachstum von 3C auf 4H

Als erstes Anwendungsbeispiel wird die Analyse eines Wachstumsexperiments vorgestellt, bei dem auf einem 4H SiC(0001) Substrat eine Schicht durch alternierende Bereitstellung von Silizium und Kohlenstoff [27] abgeschieden wurde. Photoelektronenbeugungsmuster wurden vor dem Wachstum und danach aufgenommen und mit SSC-Simulationen verglichen [1].

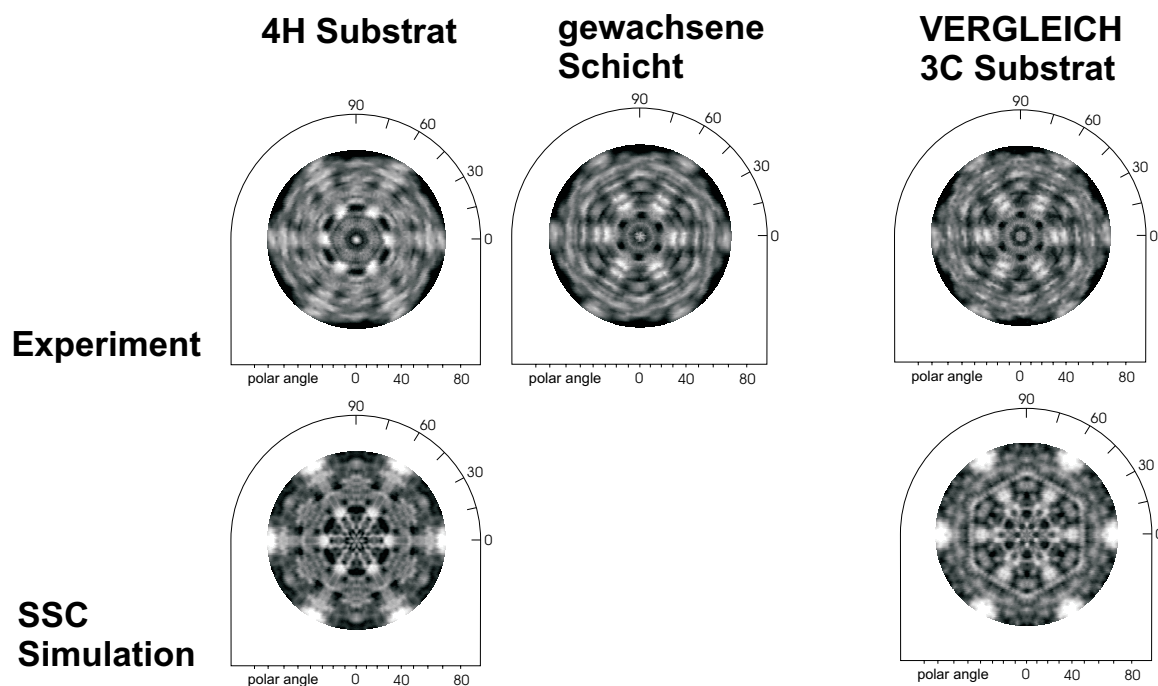


Abb. 6.24: C1s-Photoelektronenbeugungsmuster einer auf einem 4H SiC(0001) Substrat gewachsenen Schicht. Vergleich der gewachsenen Schicht mit dem Muster eines 3C SiC(111) Substrats. [1]

Am Anfang liegt eine 4H-Probe vor, wie man im linken Teil von Abb. 6.24 erkennt, wo das C1s-Beugungsmuster der Probe mit MgK_α -Anregung und die zugehörige Simulation für 4H dargestellt sind. Im Mittelteil ist das Beugungsmuster zu sehen, welches nach dem Wachstum gemessen wurde. Dieses Muster entspricht eindeutig einer kubischen Schicht, wie im rechten Teil durch Vergleich mit dem C1s-Muster einer anderen 3C SiC-Probe zu erkennen ist. Das beweist zumindest, dass sich auf der ursprünglichen 4H-Probe Domänen mit kubischer Stapelung ausgebildet haben. Die gewachsene Schicht braucht aber wegen der lokalen Empfindlichkeit der XPD nicht unbedingt großräumige Ordnung aufzuweisen. Dies wurde durch Messungen mit dem Rastertunnelmikroskop bestätigt, wo viele größere Inseln auf der 4H-Oberfläche gefunden wurden.

Der Wechsel des Beugungsmusters von 4H nach 3C wird durch SSC- Simulationen und experimentelle Messungen in Abb. 6.25 illustriert. Dort ist der Si2p-Polarplot in der (10-10)-Ebene (30° Azimut) für 4H und 3C sowie für eine wachsende Anzahl von zusätzlichen kubischen Doppellagen auf 4H gezeigt. Man erkennt deutlich, wie der Polarplot sich in der Theorie von 4H

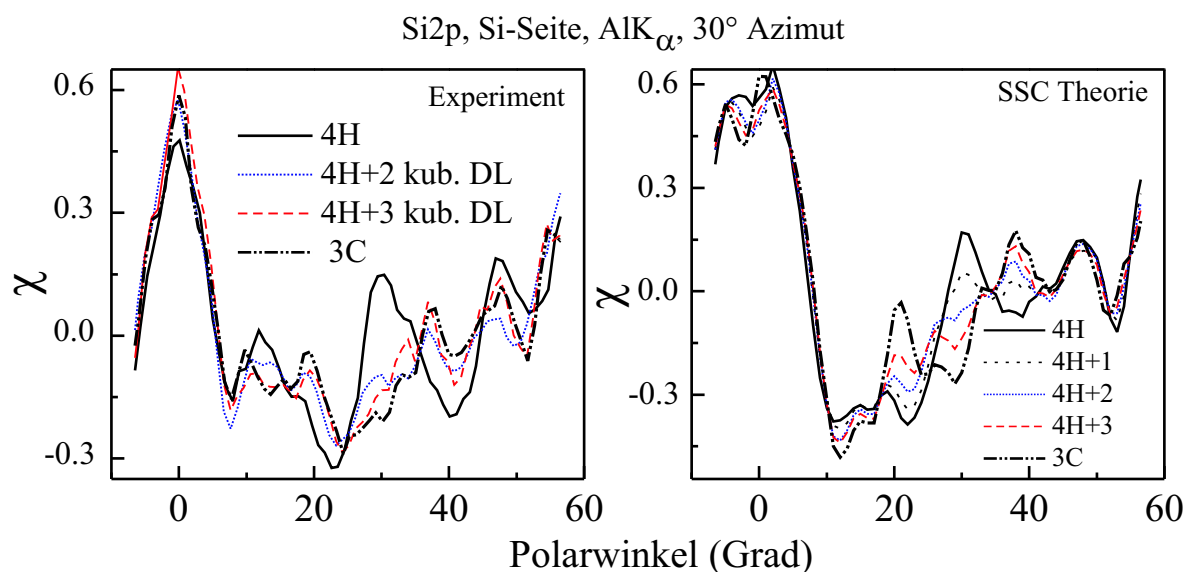


Abb. 6.25: Gemessene und simulierte Polarplots für eine auf 4H SiC(0001) gewachsene 3C SiC (111) Schicht

nach 3C entwickelt. 4H besitzt einen deutlichen Peak bei 30°, während 3C je einen Peak bei 20° und bei etwa 39° hat. Beim Übergang von 4H nach 3C fällt der 30°-Peak von 4H in etwa dem gleichen Maße ab, wie die beiden 3C-Peaks ansteigen.

Schon nach einer 3C-Elementarzelle auf 4H, also insgesamt 5 kubischen Lagen an der Oberfläche, ähnelt der Polarplot praktisch dem reinen 3C. Dies steht nicht im Widerspruch zu den obigen Aussagen über die Tiefenempfindlichkeit der Methode: weil auch die 4H-Elementarzelle bei idealer Terminierung schon 2 kubische Lagen beisteuert, hat man dann praktisch fast 2 Elementarzellen 3C an der Oberfläche vorliegen und einen entsprechend stark „kubischen“ Polarplot. Zusätzlich lassen die Simulationen aber auch erkennen, dass die Wandlung von 4H zu 3C nach einer ganzen zusätzlichen Einheitszelle 3C eben noch nicht vollkommen ist. Experimentell liegen nach den in Abb. 6.25 nominell entsprechend der Wachstumssteuerung angegebenen Schichtdicken von 2 bzw. 3 kubischen Lagen schon deutliche 3C-Polarplots vor. Dies könnte bedeuten, dass real etwas mehr als die angegebenen 2 und 3 Doppellagen gewachsen wurden, oder dass die Veränderungen, die durch das SSC-Modell vorhergesagt werden, schlagartiger verlaufen als in den simulierten Kurven angedeutet.

Das durch XPD-Muster nachgewiesene Wachstum von 3C bei den vorhandenen Wachstumsbedingungen ist in Übereinstimmung mit anderen experimentellen [33] Befunden, die eine Nukleation von kubischem Material beobachten.

6.2.3.2 Vergleich von 2H SiC und 2H AlN

Die Ähnlichkeit der Beugungsmuster von 2H AlN und 2H SiC wird in Abbildung 6.26 demonstriert. Aufgrund dieser Gemeinsamkeiten können aus XPD-Messungen an 2H AlN Rückschlüsse auf die zu erwartenden Effekte bei 2H SiC gezogen werden, welches nicht in Proben vorhanden ist, die mit XPD analysierbar sind. Wie schon argumentiert wurde, kann aus der Nähe der beteiligten Elemente im Periodensystem und den übereinstimmenden Kristallstrukturen

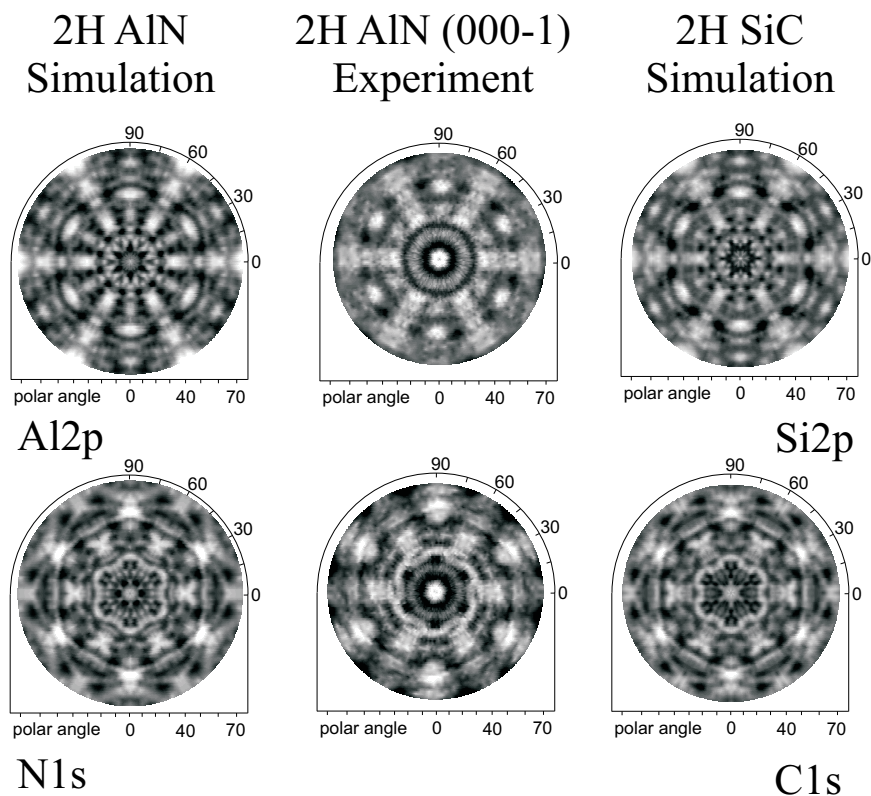


Abb. 6.26: Messungen von XPD-Mustern für 2H AlN(000-1) und vergleichende SSC-Simulationen für 2H AlN(000-1) und 2H SiC(000-1), AlK_{α} -Anregung

mit gutem Grund geschlussfolgert werden, dass auch die Beugungseffekte von Elektronen mit gleichen Energien ähnlich sein sollten. Im Falle der XPD ist das jeweils für die Schalenelektronen mit vergleichbarer Bindungsenergie der Fall: Al2p (73eV) und Si2p (100eV), sowie N1s (398eV) und C1s (285eV). Die geringen vorhandenen Unterschiede in den Bindungsenergien und den Streueigenschaften der Atome führen auch zu den nur geringen Unterschieden in den simulierten Beugungsmustern von Abbildung 6.26. Es sind lediglich einige Veränderungen in der relativen Intensität einiger Merkmale der Muster sichtbar.

Auf ähnliche Weise sollten auch ECP-Muster von 2H AlN mit entsprechenden Simulationen vergleichbar sein. Da die vorhandenen Proben keine für entsprechend scharfe Channellingmuster ausreichende Kristallqualität besaßen, kann ein solcher Vergleich hier nicht ausgeführt werden.

6.2.3.3 Polytypabhängige Peakaufspaltung und Mehrfachstreueffekte

Polytypabhängige Peakaufspaltung der Normalemission In verschiedenen Untersuchungen wurde beobachtet, dass Vorwärtsstreupeaks aufgrund von Interferenzeffekten anderer naher Atome aufgespalten sein können [140, 235]. Dass diese Aufspaltungseffekte auch polytypabhängig sind, soll in diesem Abschnitt demonstriert werden [4]. In Abbildung 6.27 ist dazu ein Vergleich der Aufspaltungen der C1s-Normalemissionpeaks bei 4H SiC(0001) und

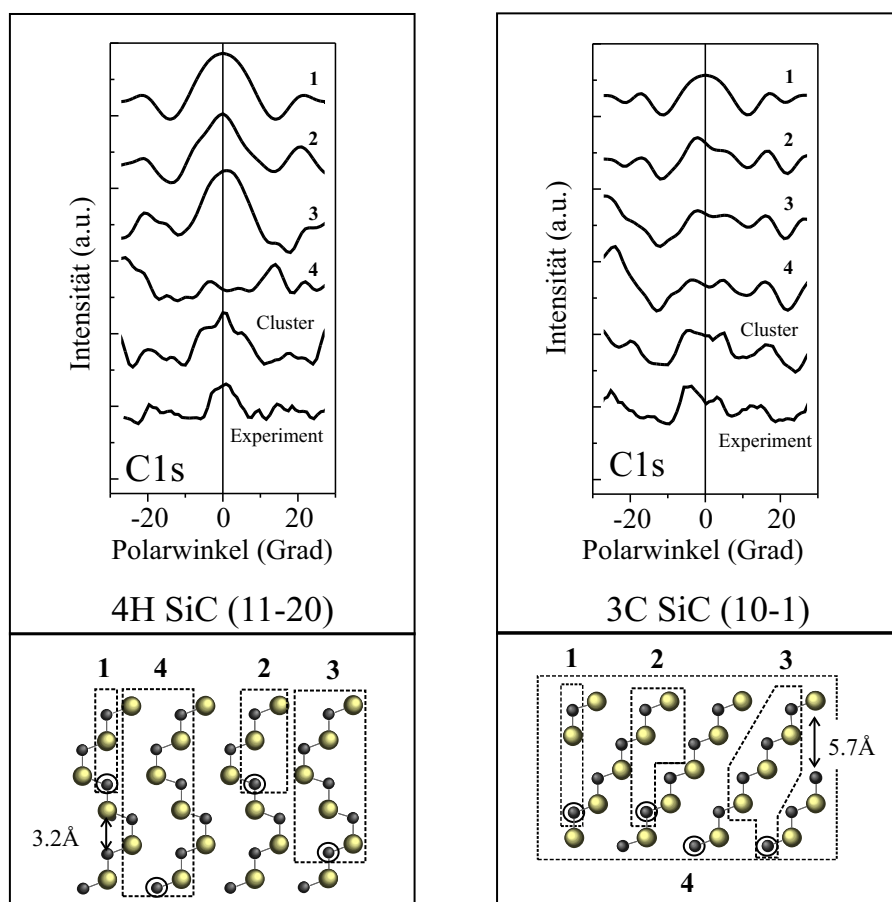


Abb. 6.27: Polytypabhängige Effekte im Peak der Normalemission. Experiment und Simulationen für ausgewählte Atomgruppen, um die Ursache für das Peaksplitting aufzuzeigen.

3C SiC(111) in der (11-20)-Ebene gezeigt. Im Experiment werden für diese beiden Polytypen verschiedene Peakformen beobachtet. Der C1s-Peak von 3C ist deutlich aufgespalten mit einem Minimum in der Mitte, während der 4H-Peak ein zentrales Maximum zeigt. Zur Erklärung dieses Verhaltens werden Einfachstreusimulationen für ausgewählte kleine Cluster herangezogen. Damit können dann die Atome ausfindig gemacht werden, die zu der Aufspaltung führen. In Abbildung 6.27 sind diese Cluster mit Zahlen bezeichnet und die jeweils betrachteten C1s-Emitter sind mit einem Kreis gekennzeichnet.

Der Cluster 1 zeigt keine Peakauflösung. In diesem Fall ist das streuende Objekt ein Si-C-Dimer, der entlang der Normalenrichtung orientiert ist. Mögliche Interferenzeffekte durch das C-Atom in Vorwärtsrichtung werden durch die größere Streuamplitude des Siliziumatoms und seiner geringeren Entfernung zum Emitter unterdrückt. Der 3C-Cluster mit der Nummer 2 entspricht einem streuenden Trimer, der aus dem Dimer aus Cluster 1 und einem weiteren Siliziumatom, welches sich 17° von der Vorwärtstreuerrichtung des Dimers entfernt befindet. Dieser Cluster bewirkt in Abbildung 6.27 schon einen Aufspaltungseffekt, woraus direkt geschlossen werden kann, dass das zusätzliche Siliziumatom außerhalb der Vorwärtstreuerrichtung für die Aufspaltung verantwortlich ist. Die Spaltung des Peaks vergrößert sich mit Cluster 3 (6 streuende Atome) und Cluster 4 (ganze gezeigte Atomgruppe). Die vollständige SSC-Simulation mit ei-

nem 25Å-Cluster reproduziert die „Vulkanform“ des Normalemissionspeaks sehr gut, wie in der experimentellen Kurve darunter zu sehen ist.

Im Fall von 3C SiC ist die Entfernung vom C1s-Emitter zum nächsten Siliziumatom in Normalenrichtung 5.7Å. Eine andere Situation liegt wegen der hexagonalen Stapelanteile in 4H SiC vor. Dort gibt es Emitter-Streuer-Kombinationen, bei denen das streuende Siliziumatom nur 3.2Å vom C1s-Emitter entfernt ist. Dies führt zu einer viel größeren gestreuten Amplitude in Vorwärtsrichtung, welche im Vergleich zu den von seitlichen Siliziumatomen kommenden Wellen in ihrer Stärke deutlich überwiegt. Deshalb sind Interferenzeffekte von diesen seitlichen Atomen viel weniger ausgeprägt. Dies erkennt man auch in Abbildung 6.27, wo die 4H-Cluster 1, 2 und 3 einfach einen einzelnen starken Vorwärtsstreuppeak zeigen, der nur sehr wenig andere Modulationen aufweist. Es gibt jedoch eine zweite Art von Emittlern in 4H. Diese befinden sich 8.2Å vom darüberliegenden Siliziumatom entfernt. Dieser Emitter ist in Cluster 4 dargestellt. Die gebeugte Intensität dieses Emitters zeigt wegen der großen Entfernung von Emitter und Streuer keinen ausgeprägten Vorwärtsstreuppeak mehr. Die seitlich gestreuten Wellen sind in dieser Entfernung mit der nach vorne gestreuten Amplitude konkurrenzfähig und bewirken die in der theoretischen Kurve für Cluster 4 gezeigte Aufspaltung. Nachdem jedoch alle Intensitäten summiert sind, bleiben in der Simulation nur noch schmale Schultern neben einem deutlich ausgeprägten Vorwärtsstreuppeak. Im Experiment sind diese Schultern noch weniger ausgeprägt, was verdeutlicht, wie die Vorwärtsstreuung an den Siliziumatomen in 3.2Å Abstand das Beugungsmuster dominiert.

Wenn man zusätzlich den 2H Polytyp betrachtet (Abb. 2.6), so sieht man, dass dort nur noch Emitter vorhanden sind, die denen aus Cluster 1 für 4H in Abbildung 6.27 gleichen. Wegen der kleinen Streuentfernungen wird also auch hier die Vorwärtsstreuintensität über eventuelle Interferenzeffekte dominieren. Aufgrund dieser Überlegung kann davon ausgegangen werden, dass 2H ebenfalls keine Peakaufspaltung zeigt. Dies wurde durch zusätzliche Simulationen bestätigt. Der 6H-Polytyp enthält weniger hexagonale Stapelungen als 4H, welches das Aufspaltungsverhalten der Normalemission zwischen 4H und 3C einordnet.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Peak-Aufspaltung der Normalemission von C1s sich von kubischem zu hexagonalem SiC verringert. Dieser Effekt wird durch das Zusammenspiel von nach vorne gestreuten und konkurrierenden seitlich gestreuten Wellen gesteuert, wobei besonders das kubische SiC seitliche Streuer besitzt, welche relativ nahe am C1s-Emitter liegen und eine ausgeprägte Aufspaltung bewirken können.

Mehrfachstreueffekte der Normalemission Mehrfachstreueffekte spielen besonders in dichtgepackten Richtungen eine wichtige Rolle. In einer Reihe von Einfachstreusimulationen wurde diese Tatsache deutlich. Besonders die Normalemission wird von den SSC-Simulationen häufig zu breit wiedergegeben. Wegen der Ansprüche an die Rechenleistung waren jedoch keine Simulationen der Polytypeneffekte mit vollständigen Clustern möglich. Gleichzeitig konnte das Einfachstreumodell viele Beobachtungen zufriedenstellend erklären. Im folgenden wird ver-

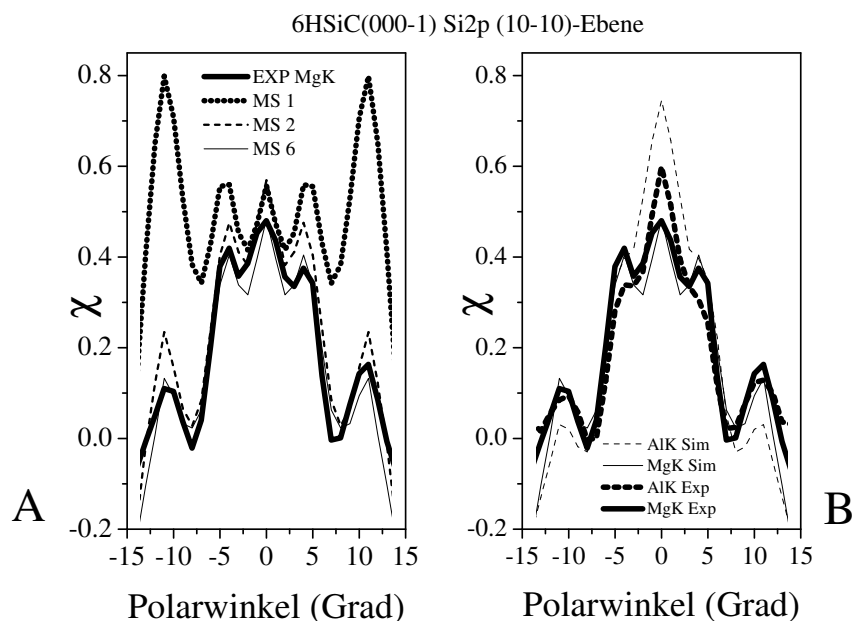


Abb. 6.28: Mehrfachstreuungseffekte und Energieabhängigkeit im Normalemissionspeak von 6H SiC (000-1). (A) Einfluss der Mehrfachstreuung mit steigender Ordnung (B) Vergleich der Peakform bei AlK $_{\alpha}$ - und MgK $_{\alpha}$ -Anregung mit Mehrfachstreu-Simulationen bis zur 6. Ordnung

sucht, die Größe der Mehrfachstreuungseffekte in Normalenrichtung am Beispiel der Si2p-Emission von 6H SiC(000-1) in der (10-10)-Ebene zu demonstrieren. Dazu wurden elliptisch geformte Cluster genutzt, die eine bestimmte Anzahl von Atomen um eine vorgegebene Richtung herum enthalten und somit zumindest die Streuung in dieser Richtung relativ gut beschreiben sollten. Es wurde das MSCD-Programm [65] benutzt. Für die Normalemission wurde ein halber rotationselliptischer Cluster mit einer kleinen Halbachse von 8.2Å an der Oberfläche und einer der Tiefe von 20Å entsprechenden großen Halbachse benutzt. Dies soll sicherstellen, dass die Normalenemission bis zu einem Winkel von mindestens $\pm 15^\circ$ korrekt simuliert wird, wie anhand des Winkels zwischen tiefstem Emitter und den Siliziumatomen am Clusterrand an der Oberfläche abgeschätzt werden kann. Der Cluster enthielt insgesamt 296 Atome und 8 Emitterlagen. Im Teil A von Abbildung 6.28 ist dazu eine experimentelle Kurve gezeigt, die mit MS-Simulationen verglichen wird, welche eine wachsende Anzahl von Streuungen berücksichtigen. Die Einfachstreu kurve überschätzt deutlich die Intensität und gibt die beiden seitlichen Peaks bei 10° Polarwinkel als viel zu stark wieder. Aber schon die Einbeziehung der Zweifachstreuung führt zu einer deutlich besseren Übereinstimmung mit der experimentellen Kurve. Die relativen Intensitäten der 0° und 10° -Peaks stimmen nun gut überein. Die Übereinstimmung mit dem Experiment verbessert sich mit zunehmender Ordnung der Mehrfachstreuung noch etwas, wie anhand der Kurve für die Sechsfachstreuung zu erkennen ist. Danach tritt keine weitere Veränderung mehr ein. Die wesentlichste Veränderung trat schon bei der Zweifachstreuung ein, was bedeutet, dass sie bei Simulationen der Polytypenkurven schon ausreichende Verbesserungen in Richtung der dichtgepackten Ketten bringen könnte.

Im Teil B von Abbildung 6.28 sind MS-Rechnungen bis zur 6. Ordnung genutzt worden, um

die energieabhängige Form des Normalemissionspeaks zu simulieren. Es wird einmal die Anregung der Si2p-Elektronen mit MgK_α und mit AlK_α verglichen. Der MgK_α -angeregte Si2p-Peak (1154eV) liegt dabei bei einer um 233eV niedrigeren Energie, als der mit AlK_α angeregte (1387eV). Der MgK_α -Peak zeigt drei Maxima: bei 0° und bei $\pm 5^\circ$. Dazu im Vergleich ist die Peakintensität bei AlK_α -Anregung in Normalenrichtung erhöht und die seitlichen Peaks bei $\pm 5^\circ$ sind nur noch ansatzweise an der Flanke des Peaks zu erkennen. Dieses Verhalten, dass durch die MS-Simulationen gut reproduziert wird, ist mit energieabhängigen Interferenzeffekten zu erklären. Weitere Aufschlüsse über die zu erwartende Polytypabhängigkeit solcher Effekte könnten energieabhängige Messungen an einem Synchrotron liefern.

6.2.3.4 Oberflächenpräparation von 6H SiC mittels Wasserstoff

Eine effektive Methode der Oberflächenpräparation besteht im Ätzen der Probe mit einem heißen Wasserstoffgas bei Temperaturen von 1500°C bis 1600°C . Dies führt im Idealfall zu Oberflächen, die durch glatte Terrassen terminiert sind und welche Stufenhöhen von halben oder ganzen Elementarzellen besitzen. Die Terrassen haben je nach der Orientierung der Probenoberfläche (off-axis-Winkel) Breiten von bis zu $1\mu\text{m}$. Die so präparierten Oberflächen sind damit sehr gut für ein weiteres MBE-Schichtwachstum geeignet. In diesem Abschnitt wird am Beispiel einer C-terminierten 6H-SiC Probe gezeigt, welche Möglichkeiten verschiedene Untersuchungsmethoden für die Analyse solcher Stufenstrukturen bieten.

Der Effekt des „step-bunching“, womit die Herausbildung von Stufen gemeint ist, die eine regelmäßige Stufenhöhenverteilung von mehreren Doppellagen haben, ist von fundamentaler Bedeutung in Prozessen des Kristallwachstums. Modelle zur Entstehung der einheitlichen Stufenterminierungen wurden aufgestellt, in denen analysiert wird, wie die Oberfläche während des Wachstums oder des Ätzens ihre freie Energie minimiert. Das Hinzufügen neuer Doppellagen ist für kubische und hexagonale Stapelungen mit unterschiedlichen Energiebeträgen gekoppelt. Daraus ergibt sich eine unterschiedliche Wachstums- bzw. Ätzgeschwindigkeit verschiedener Terrassen, die sich damit gegenseitig einholen können und eine höhere Stufe bilden können. Die Anzahl der freien Bindungen an den Stufenkanten hat ebenfalls einen Einfluss auf die Wachstumsgeschwindigkeit und führt nach dem Modell in [236] zur Herausbildung von Stufen mit einer Höhe von einer ganzen Elementarzelle. Zwischen den Stufen herrscht effektiv eine starke Abstoßung, die zu einer sehr gleichmäßigen Verteilung der Terrassenbreiten führt [237].

STM Die durch Wasserstoffätzen präparierte 6H-Probe wurde im Rastertunnelmikroskop untersucht. Dabei zeigte sich eine Oberflächenmorphologie, die vorwiegend aus Stufen bestand, die die Höhe einer ganzen Elementarzelle hatten. Damit sollte die Oberfläche größtenteils identisch terminiert sein, da sich wegen des Abstandes von einer Einheitszelle die gleiche Atomanordnung an jeder Stufenoberseite wiederholt. Eine solche Oberfläche besitzt eine dreizählige Symmetrie, was sich auch im LEED-Beugungsmuster zeigte (Abb. 6.31). Das STM kann keine Aussagen über die tieferen Lagen machen, und so bleibt dadurch unbestimmt, welche spezielle Terminierung (S1, S2, S3) an der Oberfläche vorliegt. Diese Informationen konnten durch XPD

und quantitatives LEED gewonnen werden. Damit ist es dann möglich, ein Strukturmodell der gestuften Oberfläche aufzustellen.

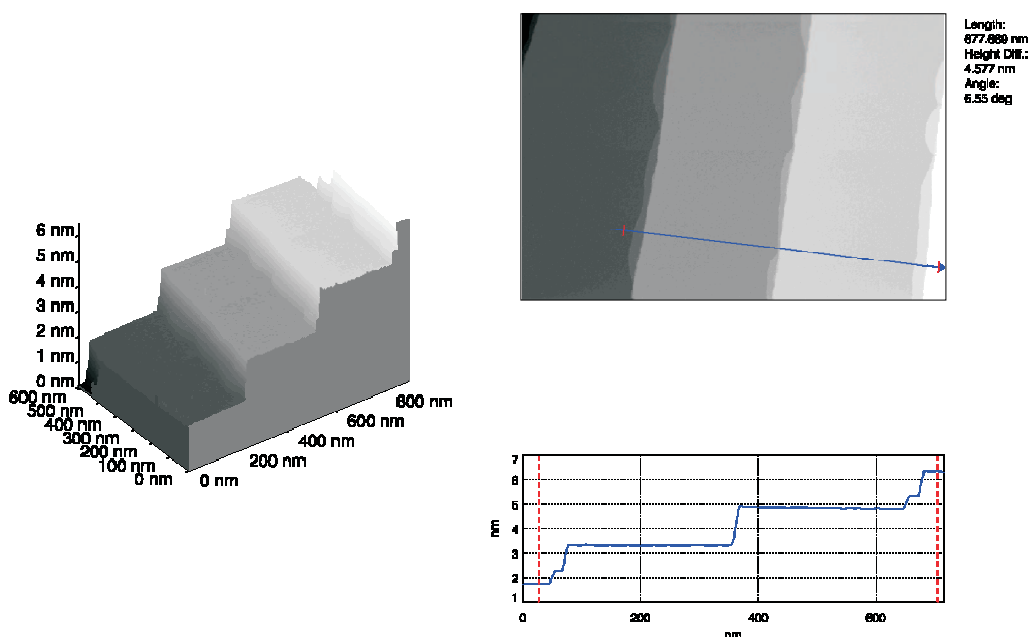


Abb. 6.29: STM-Aufnahmen der Oberfläche der mit Wasserstoff präparierten 6H SiC(000-1)-Probe

XPD Die Probe wurde nun mittels Photoelektronenbeugung analysiert. Dazu wurden unter anderem die vollständigen Beugungsmuster der mit AlK_{α} angeregten Si2p und C1s-Elektronen aufgenommen. Diese sind in Abbildung 6.30 gezeigt, wobei jeweils ein etwas über 120° großer Sektor gemessen und daraus das Gesamtmuster zusammengesetzt wurde. Man erkennt in beiden experimentellen Beugungsmustern eine deutliche Dreizähligkeit, die auf eine einheitliche Stapelterminierung schließen lässt. Im rechten Teil von Abbildung 6.30 sind die dazugehörigen SSC-Simulationen für eine S3-terminierte Oberfläche gezeigt. Diese reproduzieren die experimentellen Daten sehr gut. Das Vorliegen einer S3-terminierten Oberfläche konnte durch die Analyse von Polarplots in den Azimuten 0° , 30° und 60° weiter gestützt werden [231].

LEED In Abbildung 6.31 ist ein LEED-Muster gezeigt, das an der 6H-Probe beobachtet wurde. Deutlich ist die dreizählige Symmetrie des Musters zu erkennen, die von einer einheitlichen Terminierung der Oberfläche herrühren muss. Effekte durch eine Oberflächenrekonstruktion oder Adsorbate können aufgrund der XPS-Messungen ausgeschlossen werden. Solange kein Adsorbat vorliegt, welches sich unabhängig von der Unterlage einheitlich ordnet, müssten sich im Substrat vorliegende Domänen mit unterschiedlicher Terminierung auch auf die Orientierung einer Oberflächenrekonstruktion übertragen. Damit würde in jedem Fall eine einheitliche Terminierung der Oberfläche die Grundlage für ein dreizähliges Beugungsmuster sein.

Um konkretere Aussagen über die vorliegende Stapelfolgen machen zu können, wurden I-V-Messungen an dieser Probe durchgeführt und mit dynamischen Simulationen verglichen. In

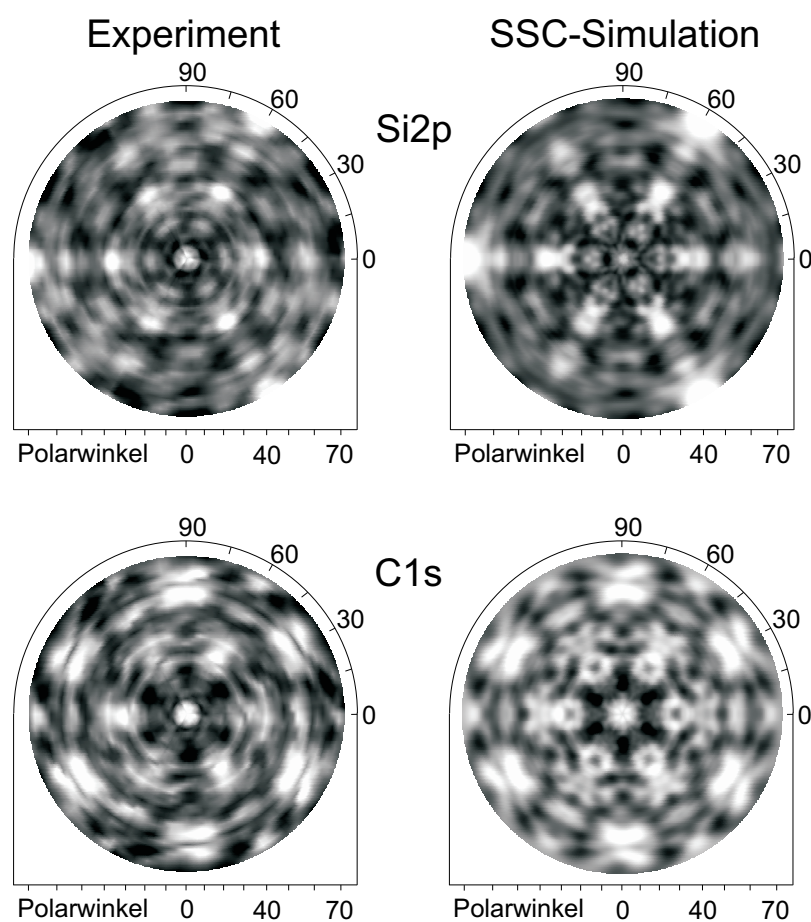


Abb. 6.30: XPD an 6H SiC(000-1) AlK α -Anregung, Si2p und C1s, Experiment und SSC-Simulation

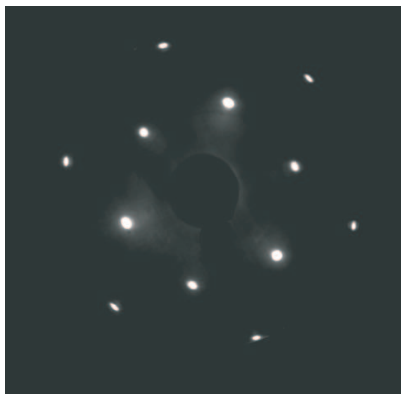


Abb. 6.31: Dreizähliges LEED Muster einer 6H SiC(000-1) Oberfläche, 124eV

Terminierung	R _{Pendry}
S1	0.64
S1*	0.44
S2	0.37
S2*	0.72
S3	0.17
S3*	0.52
S4	0.27
S4*	0.55

Abb. 6.32: R-Faktor Vergleich für verschiedene Oberflächenterminierungen einer 6H SiC (000-1) Probe

den Simulationen wurde von einer reinen Oberfläche ohne Adsorbate oder Rekonstruktion ausgegangen, mit den Atomen an den Positionen, die sie im Volumenkristall einnehmen. Es wurden die acht Terminierungen betrachtet, die in Tabelle 6.32 mit den Pendry R-Faktoren aufgeführt sind. Die beste Übereinstimmung ergab sich mit einem R-Faktor von 0.17 für eine S3-Terminierung. Der deutlich schlechtere Wert für S3* weist auf eine ausgeprägte Dreizäh-

ligkeit des Beugungsmusters hin, also auf das Dominieren einer einzigen Stapelterminierung. Andernfalls läge ein größerer Anteil von jeweils um 60° gedrehten Domänen unterschiedlicher Terminierung vor, die zu sechszähligen Mustern führen. Die Messung und die Simulation für die S3-Terminierung sind in Abbildung 6.33 gezeigt.

In einem weiteren Schritt wurde versucht, durch die Annahme einer zusätzlichen Domäne mit einer von S3 abweichenden Terminierung die Übereinstimmung mit dem Experiment weiter zu verbessern. Die größte Veränderung ergab sich bei Annahme eines Mischungsverhältnisses von 90% S3 und 10% S3* mit einem R-Faktor von 0.13. Über die Varianz des Pendry-R-Faktors am R-Faktor-Minimum [216] $var(R_{min}) = \sqrt{8V_{0i}/\Delta E}$, wobei ΔE der insgesamt analysierte Energiebereich ist, kann ein Fehlerintervall abgeschätzt werden. Der Anteil der S3-Terminierung liegt danach bei 80 bis 100%. Diese Toleranzbreite ist ähnlich der in [130].

Für die obersten Lagen konnte eine leichte Kompression festgestellt

werden, die aber nicht mehr als 0.05\AA beträgt und damit innerhalb der Fehlergrenzen liegt. Das Fehlen der theoretisch vorausgesagten starken Kontraktion von 40% (0.63\AA zu 0.38\AA) in der obersten Lage der C-Seite [238] lässt auf eine Absättigung von Bindungen an der Oberfläche schließen. Ob an der Oberfläche noch geringe Mengen an O oder H-Adatomen vorhanden sind, kann aber mit LEED allein nicht festgestellt werden. In einer anderen Untersuchung wurde zum Beispiel ebenfalls eine volumenartige Terminierung für die Oberfläche einer wasserstoffgeätzten 6H SiC(0001) Probe angenommen und gefunden, dass die Modelle mit Adatomen innerhalb der Fehlergrenzen nicht davon zu differenzieren sind [128]. Die Terminierung mit Wasserstoff wäre zum Beispiel in einem winkelaufgelösten UPS-Experiment über das Fehlen von dangling-bond-Zuständen nachweisbar [128].

Insgesamt wurde also gezeigt, wie durch die Kombination verschiedener Techniken Aussagen über die Stapelterminierung an einer wasserstoffgeätzten 6H SiC (000-1)-Probe getroffen werden können. Die festgestellte Terminierung durch Stufen aus ganzen Einheitszellen beweist, dass eine solche Morphologie auch auf C-Seiten vorliegen kann. Dies wurde bis jetzt nicht

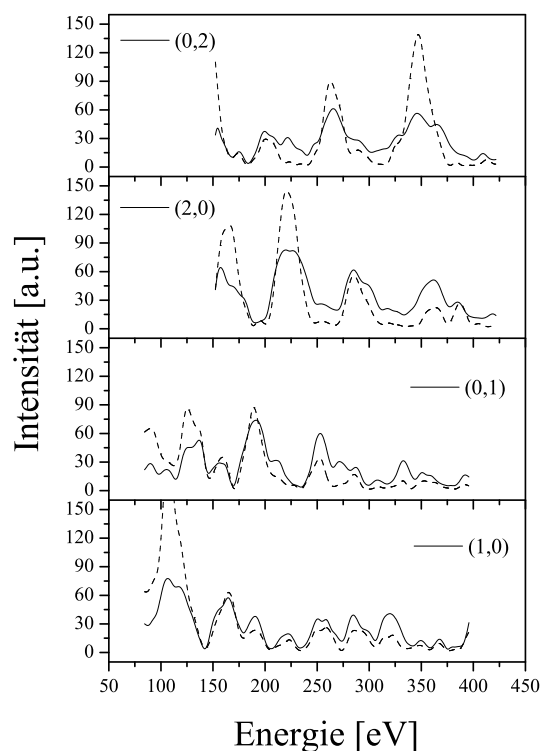


Abb. 6.33: LEED-IV Messung (durchgezogen) an der Probe 841 6HSiC(000-1) und Simulation (gestrichelt) für S3-Terminierung, $R_{Pendry}=0.17$

beobachtet.

6.2.3.5 Energieabhängigkeit der Channellingmuster von 3C SiC

Am Beispiel einer unverzwilligten 3C SiC (111)-Schicht [41] soll die Energieabhängigkeit der dynamischen Effekte, die zur Entstehung der komplexen Strukturen in den ECP führen, illustriert werden [5]. Hierbei wird das FBA-Modell nach Gleichung 4.51 verwendet. In Abbildung 6.34 sind dazu kinematische Simulationen der in der Nähe der (111)-Zonenachse auftretenden Kikuchi-Linien gezeigt. Dabei ist besonders der Bereich innerhalb des Sechsecks aus den $\{-2\ 2\ 0\}$ -Linien wichtig. Qualitativ ist schon an diesen kinematischen Simulationen zu erkennen, dass in der Position einiger spezieller Linien starke Veränderungen auftreten. Die in Abbildung 6.34 gezeigten Reflexe beinhalten alle Gitterebenscharen bis zu einem minimalen Abstand d_{hkl} von 0.5\AA und wurden mit dem Programm „Electron Diffraction“ [217] gezeichnet. Der Winkeldurchmesser der abgebildeten Muster beträgt etwa 4 Grad.

Wie man beim Vergleich der kinematischen Muster bei 4000eV und 4200eV feststellt, treten schon in diesem Energieintervall im Zentralbereich des Musters deutliche Veränderungen auf. Diese werden durch Linien aus den höheren Lauezonen (higher order Laue zones, HOLZ) bewirkt. Für die (111)-Zonenachse wird die Lauezone n mit den Miller-Indizes h, k, l als $n = h + k + l$ bestimmt. Anhand des vergrößerten und indizierten Musters für 8000eV kann man zum Beispiel die Linien ihren Lauezonen zuordnen. Die $\{-2\ 2\ 0\}$ -Linien gehören zur nullten Laue-Zone (zero order Laue zone, ZOLZ), die $\{3\ 3\ 5\}$ -Linien zur ersten Lauezone (first order Laue zone, FOLZ) und die $\{-6\ 4\ 4\}$ -Linien zur zweiten Lauezone (second order Laue zone, SOLZ). Wie man an den Mustern in Abbildung 6.34 sieht, macht die Positionsveränderung der HOLZ-Linien nahe der Zonenachse den Hauptanteil an den Veränderungen der Muster aus. Aus ihren dynamischen Wechselwirkungen muss dann auch eine veränderte Intensitätsverteilung des experimentell gemessenen Musters folgen, wie schon in Abschnitt 6.2.2.2 erwähnt wurde.

Die in Abbildung 6.34 gezeigten kinematischen Simulationen waren die Grundlage zur Auswahl der in die dynamischen Rechnungen eingehenden reflektierenden Gitterebenen. Dies führte zu einem Minimum von etwa 80 Reflexen, die in Betracht gezogen werden mussten, um die experimentell beobachteten Muster zu reproduzieren. Die Simulationen wurden für eine Anzahl von 200×200 Einfallsrichtungen des Elektronenstrahls berechnet, die den experimentell beobachteten Bereich überdeckten. Das resultierende Bild wurde geglättet, um die begrenzte Winkelauflösung im Experiment zu berücksichtigen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.35 gezeigt. Die hexagonalen Bereiche sind durch die $\{-2\ 2\ 0\}$ -Reflexe begrenzt und wurden alle auf die gleiche Größe skaliert. Wie in Abbildung 6.35 zu sehen ist, werden die experimentellen Muster durch die Simulationen sehr gut beschrieben. Wie für die [111]-Richtung eines kubischen Kristalls zu erwarten ist, besitzen die Muster eine dreizählige Symmetrie. Außerdem ist eine starke Energieabhängigkeit der Muster zu beobachten. Zum Beispiel steht einem zentralen Intensitätsmaximum bei 5900eV ein Minimum in Normalenrichtung bei 8000eV gegenüber.

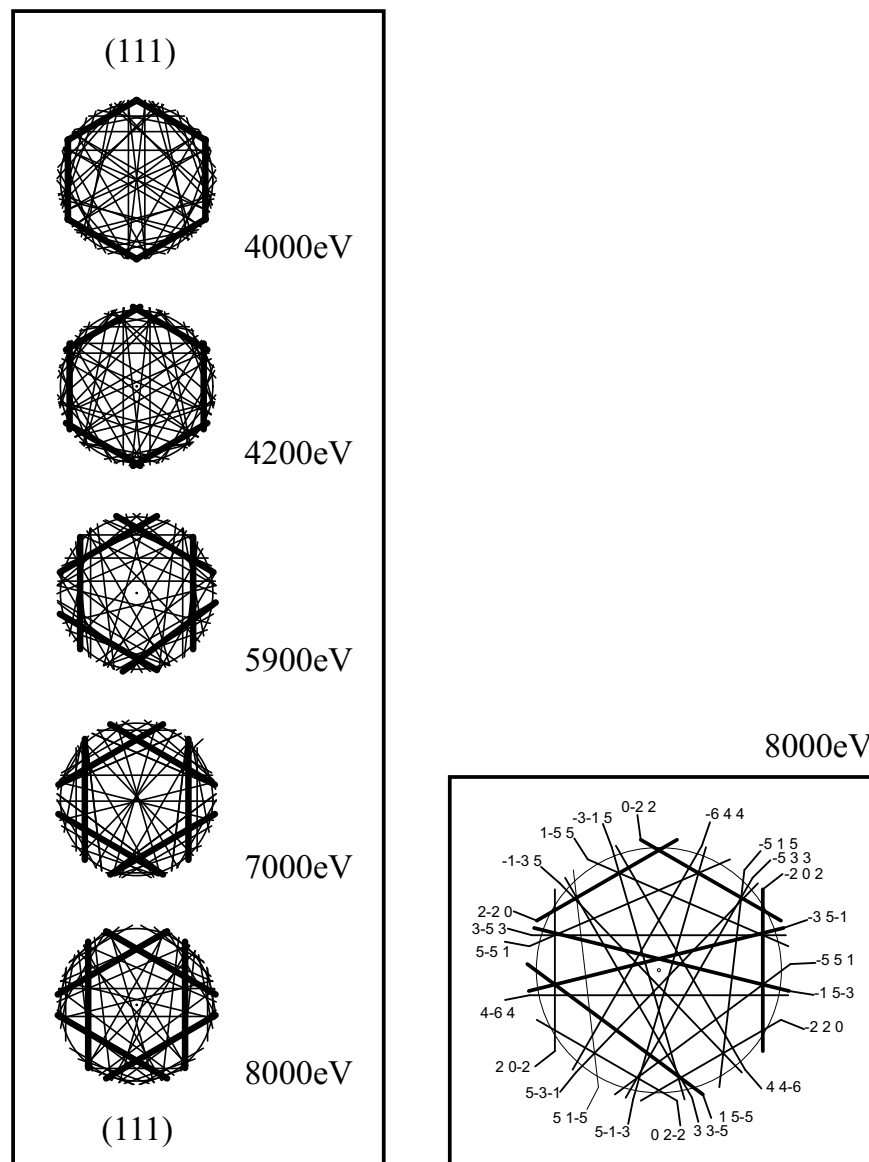


Abb. 6.34: Energieabhängigkeit der Elektronenchannellingmuster von 3C(111). Lage der Bragg-Bedingungen bei verschiedenen Energien.

Auch die anderen energieabhängigen Veränderungen in den Mustern werden durch die Simulationen sehr gut beschrieben.

Weil der Elektronenstrahl über die gesamte Probe gerastert wird, ist die örtliche und die Winkelauflösung durch dieses Verfahren begrenzt. Gleichzeitig erhält man aber auch gemittelte Aussagen für die ganze Probe. Jedoch könnten orts aufgelöste Untersuchungen nützliche Hinweise auf Domänen mit verschiedenen Polytypen liefern. Ein Weg, die Ortsauflösung zu vergrößern, ist die Benutzung der „selected area channelling patterns“ (SACP), bei denen der Einfallsstrahl durch eine spezielle Elektronenoptik immer am selben Ort der Probe gehalten wird, während sich trotzdem der Einfallswinkel ändert („rocking beam setup“ [9]). Eine andere Methode, mit einer Ortsauflösung im Mikrometerbereich, sind die Elektronenrückstreuungsmuster (EBSD), die mit den ECP über das Reziprozitätsprinzip verbunden sind.

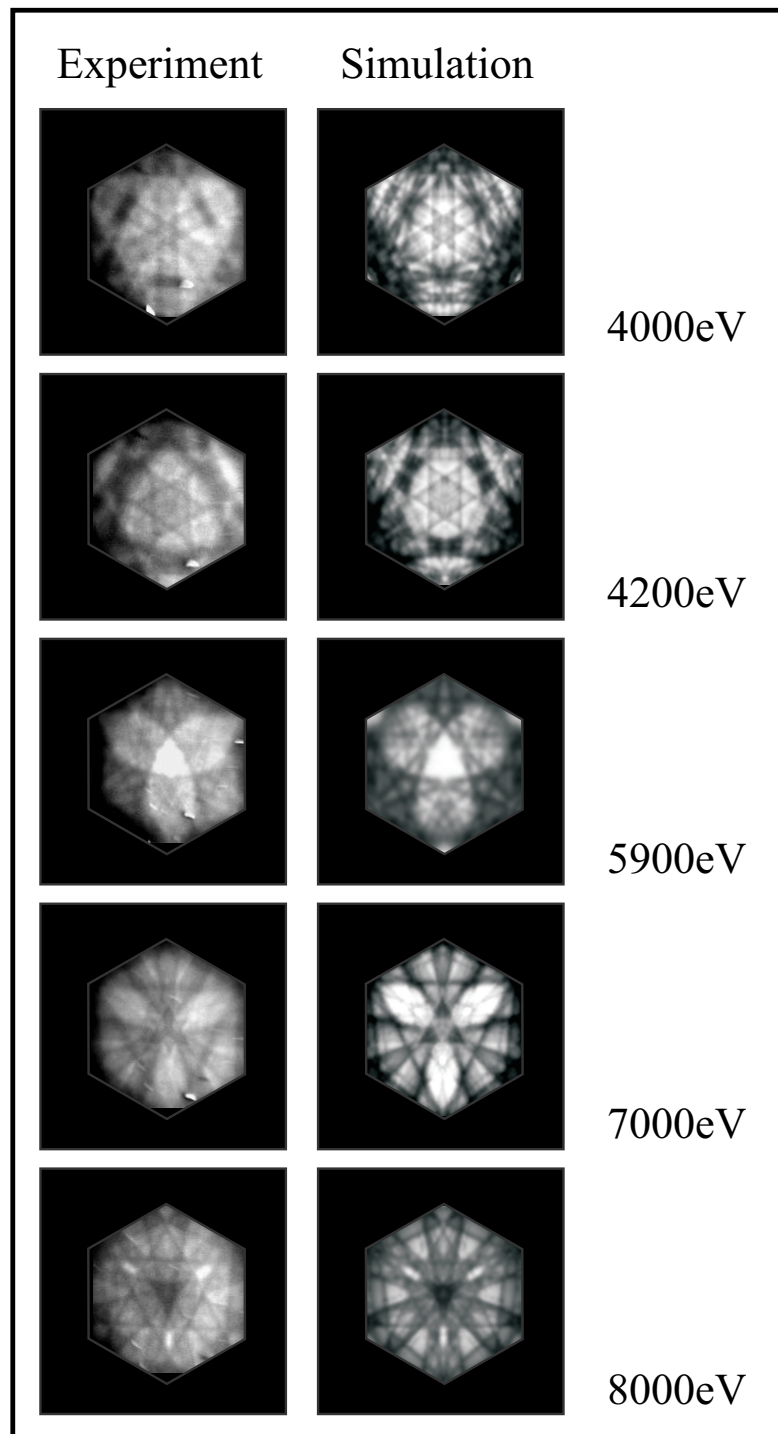


Abb. 6.35: Energieabhängigkeit der Elektronenchannellingmuster von 3C(111). Experiment und Simulationen mit FBA-Modell.

6.3 Elektronenbeugung bei 1keV: eine vergleichende Betrachtung

6.3.1 Volumeneffekte der XPD im Blochwellenmodell

Das in Abschnitt 4.4 beschriebene Blochwellenmodell wird in diesem Kapitel zur Simulation von Photoelektronenbeugungsmustern genutzt. Damit können einzelne Effekte im Rahmen des Vorwärtsstreumodells im Cluster und im Rahmen der Reflexion an Netzebenen interpretiert und

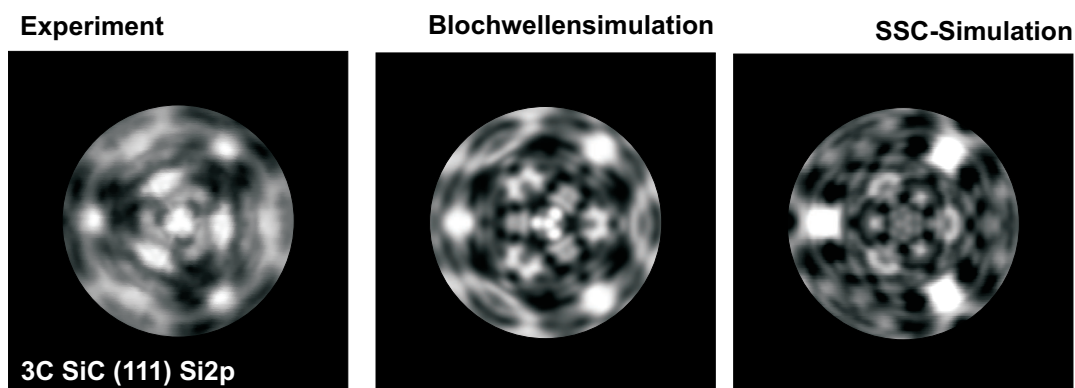


Abb. 6.36: Vergleich von Beugungsmustern von 3C SiC(111) mit Simulationen mit dem Blochwellenmodell und dem SSC-Modell, Si2p, AlK $_{\alpha}$ -Anregung, Polarwinkelbereich bis 40°

zugeordnet werden.

6.3.1.1 3C SiC: Beugungseffekte im Blochwellenmodell und im SSC-Modell

Als erste Anwendung des Blochwellenmodells soll das Si2p-Beugungsmuster einer 3C SiC(111)-Schicht dienen. Dazu wurden mittels des Programms „Electron Diffraction“ [217] nach fallendem Gitterebenenabstand d_{hkl} 283 Netzebenenscharen ausgewählt, deren Kikuchi-Linien innerhalb eines Polarwinkelbereichs von 60° um die Oberflächennormale liegen und somit die gemessenen Beugungsmuster überdecken. Diese Anzahl von Reflexen war mit den vorhandenen Mitteln der Rechentechnik noch beherrschbar, während die Ergebnisse der Simulationen eine ausreichende Konvergenz zeigten, um im Vergleich mit dem Experiment nutzbar zu sein. Die weiteren Parameter, wie die Fourierkoeffizienten der Streupotentiale, die Debye-Waller-Faktoren und die Absorptionsparameter wurden wie bei den Elektronenchannellingmustern in Abschnitt 4.3.4 beschrieben eingesetzt. Das hat insgesamt zu Folge, dass zur Simulation der XPD-Muster mit dem unabhängigen Blochwellenmodell nach Formel 4.57 praktisch das unveränderte ECP-Programm benutzt werden konnte. Der einzige neue Parameter, der zusätzlich angegeben werden muss, ist die Art des Emitteratoms. Außerdem musste die stereographische Projektion der darzustellenden Daten bei XPD beachtet werden, sowie die begrenzte Winkelauflösung des Analysators, welche durch eine Mittelung der simulierten Daten über einen entsprechenden Raumwinkelbereich berücksichtigt wurde.

In Abbildung 6.36 ist das Ergebnis der Simulation für den Polarwinkelbereich bis 40° gezeigt. Es sind die experimentelle Messung und die Simulation im Blochwellenmodell und mit dem SSC-Modell gegenübergestellt. Wie man erkennt, gibt das Blochwellenmodell die experimentellen Daten sehr gut wieder. Die Intensitätsmaxima werden reproduziert, ebenso wie die ringförmigen Strukturen und die Bereiche mit geringer Intensität. Die SSC-Simulation zeigt eine ähnlich gute Übereinstimmung mit dem Experiment, wobei die meisten Strukturen in der Blochwellensimulation und in der SSC-Simulation einander zugeordnet werden können. Dies ermöglicht einen genaueren Vergleich der Ursachen, die in beiden Modellen für die beobachteten Effekte verantwortlich gemacht werden können. Insbesondere sollen die Ringstrukturen

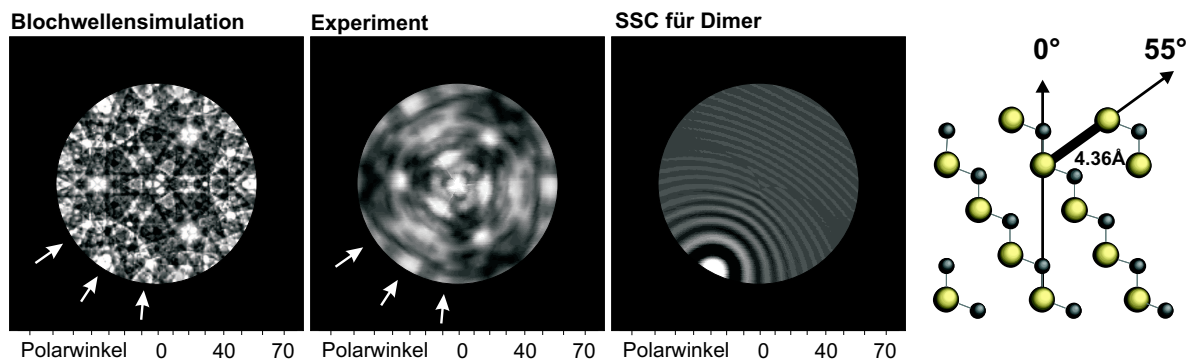


Abb. 6.37: Ringförmige Strukturen in Beugungsmustern von 3C SiC(111) können mit dem Blochwellenmodell und dem SSC-Modell erklärt werden. Si2p, AlK $_{\alpha}$ -Anregung

genauer analysiert werden.

Dazu ist in Abbildung 6.37 im experimentellen Si2p-Beugungsmuster das Vorwärtstreumaximum in [010]-Richtung (55° Polarwinkel, 240° Azimutwinkel, vgl. Abb. 5.1) zusammen mit dem umgebenden Ring durch Pfeile gekennzeichnet. Im Vorwärtstreubild kann dieser Ring als das erste Nebenmaximum bei der Beugung am im rechten Teil von Abbildung 6.37 gekennzeichneten Emitter-Streuer-Paar interpretiert werden. Die halben Öffnungswinkel 2θ dieser Ringe sind über die Wegdifferenz zwischen den Streuern r , die Wellenzahl k der Elektronenwelle und die durch die Streuung bedingte Phasenverschiebung $\Delta\phi$ folgendermaßen definiert [206] (Abbildung 6.38):

$$kr(1 - \cos 2\theta) + \Delta\phi(2\theta) = 2\pi \quad (6.2)$$

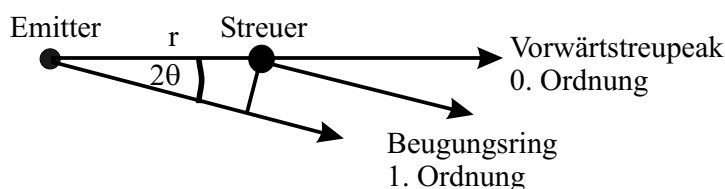


Abb. 6.38: Ringstrukturen um ein Vorwärtstreumaximum als Interferenzmaxima 1. Ordnung

Durch Messung des Öffnungswinkels der Beugungsringe kann man somit den Abstand zwischen Emitter- und Streuatome abschätzen. Der in Abbildung 6.37 gekennzeichnete Ring von etwa 20° führt damit zu einem Abstand r von 4.59 Å ($k=19.08 \text{ Å}^{-1}$). Dabei wurde die Phasenverschiebung bei den Winkeln der Beugungsringe auf $\Delta\phi \approx 1$ gesetzt, was der Phase des in den SSC-Simulationen benutzten komplexen Streufaktors von Silizium bei dieser Energie und bei diesem Streuwinkel entspricht. Der so ermittelte Abstand stimmt mit etwas mehr als 5% Abweichung noch relativ gut mit den erwarteten 4.36 Å überein.

In Abbildung 6.37 ist auch die dazugehörige SSC-Simulation für dieses Emitter-Streuer-Paar mit einem Abstand von 4.36 Å gezeigt. Sie ergibt ein Vorwärtstreumaximum bei 55° Polarwinkel und eine Reihe von ringförmigen Nebenmaxima, von denen das erste das stärkste ist wegen

des rapiden Abfalls der Streuamplitude zu größeren Winkeln hin. Der Durchmesser dieses Rings stimmt gut mit dem im Experiment beobachteten überein.

Im linken Teil von Abbildung 6.37 ist die zu Abbildung 6.36 führende Blochwellensimulation gezeigt, bei der die begrenzte Winkelauflösung noch nicht berücksichtigt ist. So werden die einzelnen Kikuchi-Linien besser sichtbar, die dann zu bestimmten Strukturen im Bild führen. Es ist erkennbar, dass das Maximum bei 55° Polarwinkel wie im Vorwärtsstreubild reproduziert wird und dass sich ebenfalls eine ringförmige Intensitätserhöhung um dieses Maximum herum ergibt. Dieser Ring wird als die einhüllende Kurve einer Reihe einzelner Linien gebildet. Im reziproken Raum erscheint der Ring dort, wo zum ersten Mal Reflexe angeregt werden können, die nicht senkrecht zur Zonenachse liegen, wie in Abbildung 6.39 (A) verdeutlicht ist. Dieser Ring wird deshalb als „First Order Laue Zone“-Ring (FOLZ-Ring) bezeichnet.

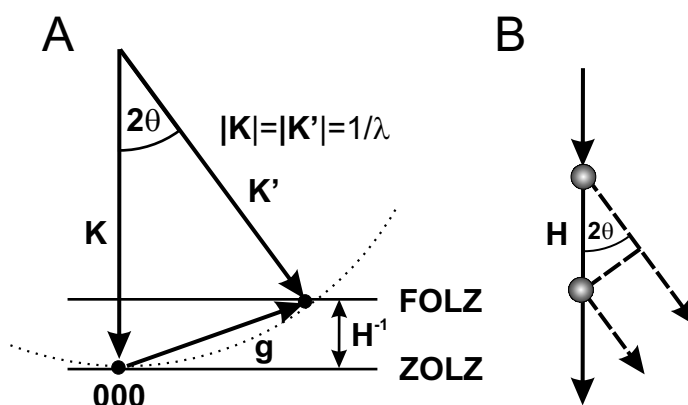


Abb. 6.39: Erklärung der Ringstrukturen ausgehend vom reziproken Raum (A) und vom Realraum (B). In beiden Fällen ergibt sich derselbe Abstand H aus dem Öffnungswinkel des Rings.

Aus den halben Öffnungswinkeln 2θ der beobachteten Ringe können sowohl im Bild des reziproken Raums mit reflektierenden Netzebenen, als auch im Einfachstreubild mit einzelnen Atomen Rückschlüsse über den Abstand zwischen den Gitterebenen bzw. zwischen den streuenden Atomen gezogen werden. Aus Gründen der Einfachheit wird die Streuung einer ebenen Welle an Netzebenen betrachtet, die so mit Atomen besetzt sind, dass dem Netzebenenabstand H^{-1} (in \AA^{-1}) der Atomabstand H (in \AA) entspricht (Abbildung 6.39). Auch sollen die Streufaktoren der Bornschen Näherung entsprechend reell sein. Eine Phasenverschiebung bei der Streuung wird also vernachlässigt, was hohen kinetischen Energien der Elektronen entspricht. Aus Abbildung 6.39 (A) erkennt man mittels einfacher Geometrie, dass $H^{-1} = K - K \cos 2\theta$, mit der inversen Elektronenwellenlänge K . Im Realraum muss man die Pfadlängenunterschiede bei der Streuung vom ersten und zweiten Atom bilden und für das Interferenzmaximum erster Ordnung gleich der Wellenlänge setzen. Damit erhält man dann aus Abbildung 6.39 (B) die Forderung $H - H \cos 2\theta = \lambda = K^{-1}$, was dasselbe H wie im reziproken Raum ergibt. Damit ist gezeigt, dass bei hohen kinetischen Energien im Rahmen der kinematischen oder Einfachstreuungstheorie die Ringstrukturen in äquivalenter Weise als FOLZ-Ringe (in der Sprache der Hochenergie-Elektronenbeugung) oder als Interferenzmaxima erster Ordnung bei Streuung ent-

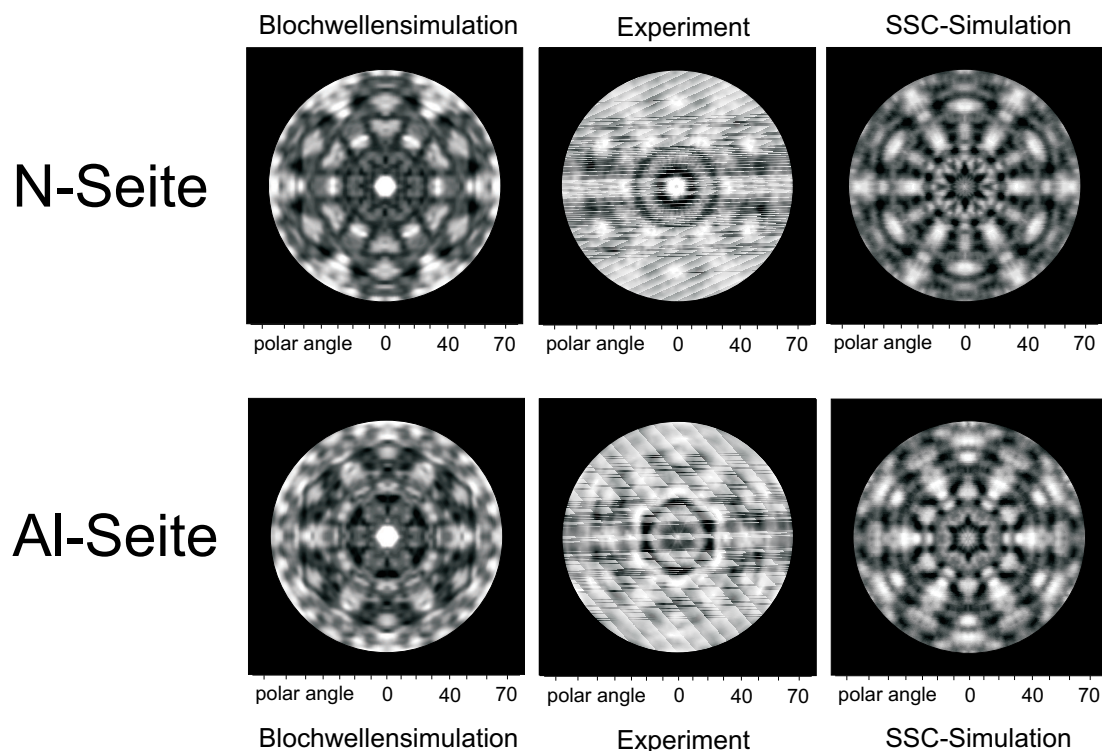


Abb. 6.40: Simulationen mit dem unabhängigen Blochwellenmodell für 2H AlN, Al2p, AlK $_{\alpha}$ -Anregung, $E_{kin}=1413\text{eV}$, 238 Reflexe

lang einer Kette von Atomen (in der Sprache der Cluster-Photoelektronenbeugung) interpretiert werden können.

6.3.1.2 2H AlN: Elementabhängigkeit der Beugung

Das dynamische Blochwellenmodell der XPD ermöglicht in Erweiterung der Zweistrahltheorie [190] Aussagen über elementspezifische Beugungsmuster. Dazu gehört insbesondere die Unterscheidung von polaren Oberflächen. Als Beispiel wurden hier die XPD-Muster von 2H AlN gewählt, die nach ihrer (0001) bzw. (000-1) Richtung sowie nach den Al2p- und N1s-Emissionen analysiert werden sollen.

In Abbildung 6.40 und 6.41 sind dazu experimentelle Messungen den berechneten Al2p- und die N1s-Beugungsmustern der Al-Seite (0001) und der N-Seite (000-1) gegenübergestellt, wie sie mittels des Blochwellenmodells und des SSC-Modells simuliert wurden. Für die Blochwellensimulation wurden jeweils über 230 Reflexe benutzt. Es erfolgte eine der experimentellen Winkelauflösung entsprechende Glättung der berechneten Muster.

Der Vergleich der experimentellen Beugungsmuster und der Blochwellensimulationen zeigt, dass mit diesen Simulationen eine eindeutige Zuordnung von emittierendem Atom sowie der Polarität möglich ist. Wesentliche Strukturen in den Beugungsmustern werden in ihren element- und polaritätsabhängigen Veränderungen korrekt wiedergegeben. Als größte Abweichungen zeigen sich die Normalemissionsmaxima auf der Al-Seite sowohl für Al2p, als auch für N1s.

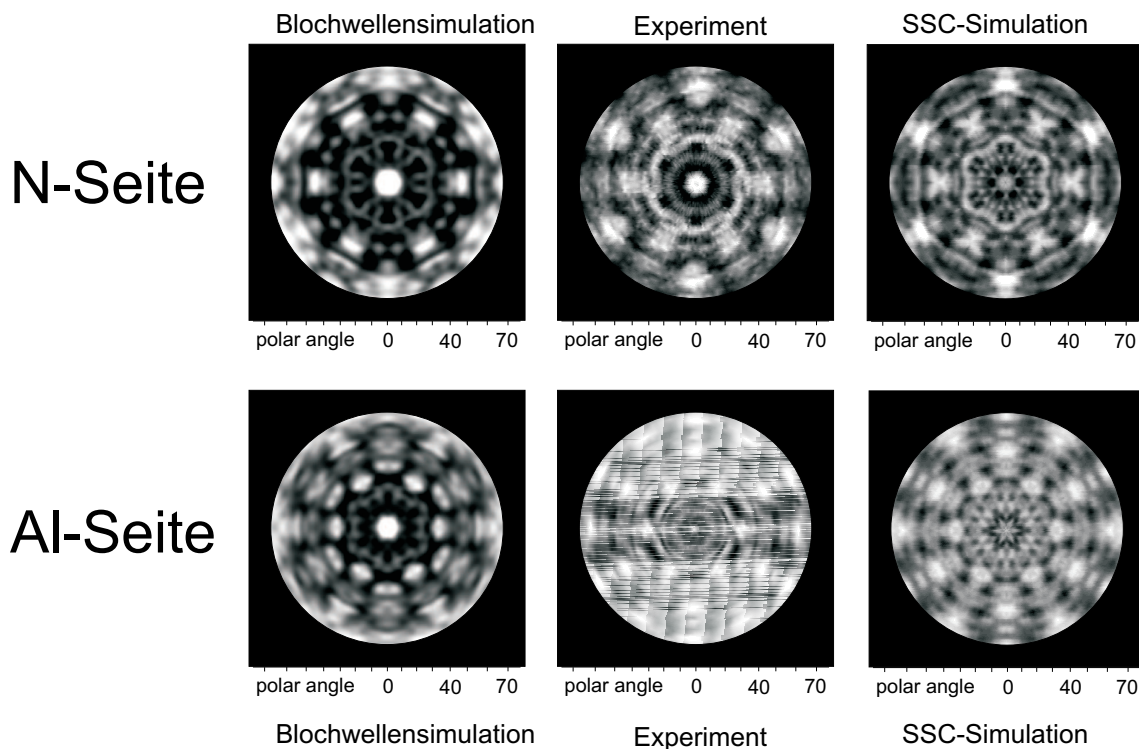


Abb. 6.41: Simulationen mit dem unabhängigen Blochwellenmodell für 2H AlN, N1s, AlK $_{\alpha}$ -Anregung, 233 Reflexe, $E_{kin}=1089\text{eV}$

Dies könnte darin begründet sein, dass die benutzte Anzahl von Reflexen zur Beschreibung dieser Merkmale nicht ausreicht. Eine Erhöhung war aber aufgrund der dazu erforderlichen Rechenzeit nicht möglich. Trotzdem erkennt man zum Beispiel für die Al2p-Emission in Abbildung 6.40 die charakteristischen Unterschiede. Vergleicht man nämlich die Intensität bei etwa 60° Polarwinkel (in den Randbereichen der dargestellten Muster) in den Azimuten 0° und 30°, so erkennt man, dass sich die N-Seite durch eine höhere Intensität bei 0° Azimutwinkel und die Al-Seite durch eine höhere Intensität im 30°-Azimut auszeichnen. Aber auch in den inneren Bereichen der Muster, im Gebiet von etwa 30° bis 40° Polarwinkel, erkennt man deutliche Unterschiede zwischen den Polaritäten, die durch die Blochwellensimulationen qualitativ gut wiedergegeben werden. Beschränkungen des benutzten Algorithmus, wie zum Beispiel die benutzten Näherungen bei der Elektronenbeugung und die Vernachlässigung der Winkelabhängigkeit der Photoemission, müßten in theoretischen Untersuchungen näher analysiert werden. Hier sollte jedoch nur die prinzipielle Anwendbarkeit des Modells gezeigt werden.

Die SSC-Simulationen, die in den Abbildungen 6.40 und 6.41 zum Vergleich dargestellt sind, zeigen ebenfalls eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Auch der Vergleich mit den Blochwellensimulationen zeigt eine qualitativ gute Übereinstimmung in den berechneten Beugungsintensitäten. Dass beide benutzten Modelle ihre Beschränkungen haben, wird daran deutlich, dass rein visuell gesehen nicht generell das Blochwellenmodell oder das SSC-Modell die bessere Beschreibung liefert.

6.3.2 Einfachstreusimulationen für die quasielastische Rückstreuung an Oberflächen

Weil das Blochwellenmodell der ECP eine Periodizität auch senkrecht zur Oberfläche annimmt, ist es nicht zur Analyse von Effekten in lokalen Oberflächenbereichen geeignet, die eine solche Periodizität nicht aufweisen müssen und die im Vergleich zum Volumenkristall eine veränderte Symmetrie aufweisen können. Dies ist zum Beispiel bei Effekten der Fall, die in einer LEED-Anordnung als Untergrund des elastischen Musters beobachtet werden. Dabei betragen die kinetischen Energien der Elektronen höchstens etwa 1keV, was den Oberflächenbereich, der gemäß der inelastischen freien Weglänge zur Entstehung der Rückstreumuster beiträgt, sehr begrenzt und demzufolge gute Bedingungen für die Anwendbarkeit eines Clustermodells bietet. Die Entstehung der Kikuchi-Linien auf dem LEED-Schirm kann ganz analog zu den Elektronenchannellingmustern durch die Streuung an Phononen erklärt werden [239]. Der Übergang von dem elastischen LEED-Muster, welches von scharfen Spots dominiert wird, zu dem Rückstreumuster mit Kikuchilinien und Vorwärtsstreumaxima erfolgt dabei durch Anregung einer mit steigender Elektronenenergie steigenden Anzahl von Phononen, wodurch die von den einzelnen Streuern ausgehenden Kugelwellen keine feste Phasenbeziehung mehr haben und demzufolge als unabhängige Punktemitter betrachtet werden können. In einem Übergangsbereich existieren Merkmale der elastisch und der quasielastisch gestreuten Elektronen gemeinsam [240, 241].

In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, dass das im Theorieteil beschriebene und in ein Programm umgesetzte SCC-Modell auch zur Simulation des LEED-Untergrunds benutzt werden kann. Der wesentliche Unterschied zur Photoelektronenbeugung besteht in der Anregung der quasielastischen Elektronen, die als isotrop angenommen wird. Außerdem ist die Abschwächung des anregenden Strahls zu beachten. Da die Elektronen immer senkrecht auf die Probe treffen sollen, können die Beugungseffekte des einfallenden Strahls vernachlässigt werden [191].

In Abbildung 6.42 ist links ein LEED-Muster einer 6H SiC(0001)-Probe bei 1000eV gezeigt. Man erkennt deutlich die Kikuchi-Bänder und drei Intensitätsmaxima bei etwa 35° Polarwinkel. Der gesamte sichtbare Bereich geht etwa bis zu Polarwinkeln von 50°. Außerdem sind noch elastische Beugungssspots zu erkennen. Die überlagerten Muster der elastischen und der quasielastischen Elektronen haben jeweils eine dreizählige Symmetrie, was auf eine einheitliche Stapelterminierung schließen lässt. Im STM wurden dazu passend Stufenhöhen von einer Elementarzelle beobachtet. Im rechten Teil von Abbildung 6.42 ist das mit dem SSC-Ansatz simulierte Muster gezeigt. Dabei wurden die elastische und die quasielastische Streuung getrennt behandelt und später addiert. Das Verhältnis zwischen beiden wurde empirisch an das Experiment angepasst, weil die elastischen Spots in diesem Fall nur zum Vergleich dienen sollen. Zur Simulation der elastischen LEED-Spots wurde die kinematische Formel für die Amplitude bei der elastischen Beugung

$$A_{\Delta\mathbf{k}} = \sum_j f_j(\Delta\mathbf{k}) \exp(i\Delta\mathbf{k}\mathbf{R}_j) \exp(-M_j) \exp(-L_j/2\lambda) \quad (6.3)$$

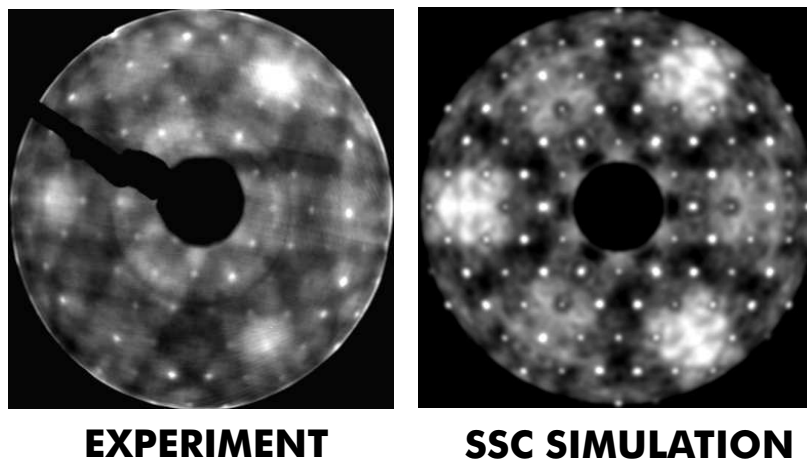


Abb. 6.42: Dreizähliges LEED-Muster einer 6H(0001)-Oberfläche. Simulation der elastischen Beugung mittels kinematischer Theorie, des inelastischen Untergrundes mittels eines SSC-Modells mit Quellen an den Atompositionen.

direkt auf einen Cluster von Atomen bei \mathbf{R}_j angewendet. Die inelastische Abschwächung der Amplitude erfolgt gemäß der im Material zurückgelegten Weglänge L_j und der IMFP λ .

Zur Simulation des quasielastischen Untergrunds wurde das für isotrope Emission modifizierte SSC-Modell nach Formel 4.39 mit einer Abschwächung der einfallenden Intensität entsprechend der Tiefe des Emitters angewendet. Als IMFP wurde ein Wert von 14\AA in einem Cluster von 15\AA Radius benutzt. Die Polarwinkel θ des Musters wurden der sphärischen Form des Schirms entsprechend in die Größe $s = \sin \theta$ transformiert.

Man erkennt, dass das SSC-Modell die Lage und Breite der Kikuchi-Bänder und die drei größten Intensitätsmaxima korrekt vorraussagt, wobei die Intensitätsmaxima als typischer SSC-Effekt im Vergleich zum Experiment zu breit sind. Vergleicht man die Lage der elastischen Spots, so sind weitere Übereinstimmungen, auch in der relativen Lage von elastischen und quasielastischen Merkmalen, zu beobachten. Qualitativ wird die Dreizähligkeit des elastischen Musters vorhergesagt, wegen dynamischer Effekte sind aber experimentell nicht alle kinematisch simulierten Spots vorhanden. Insgesamt zeigt also Abbildung 6.42 die qualitative Anwendbarkeit des SSC-Modells auf quasielastische LEED-Muster von SiC-Oberflächen.

7 Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit bestand in der experimentellen und theoretischen Untersuchung verschiedener Elektronenbeugungsmethoden hinsichtlich ihrer Eignung zur zerstörungsfreien Kristallstrukturanalyse ultradünner Schichten aus Siliziumkarbid (SiC) im Ultrahochvakuum. Insbesondere stand das Problem der Polytyp- und Polaritätsbestimmung solcher Schichten im Mittelpunkt. Es wurden die Methoden der röntgenangeregten Photoelektronenbeugung (XPD), der Elektronenchannellingmuster (ECP), der niederenergetischen Elektronenbeugung (LEED) und der hochenergetischen Elektronenbeugung bei streifendem Einfall (RHEED) betrachtet. Zur effektiven Interpretation der Experimente wurden verschiedene Simulationsmethoden angewendet und in ihren Gemeinsamkeiten und Unterschieden analysiert.

Elektronenbeugungsmethoden und ihre Simulationsmodelle Röntgenangeregte Photoelektronenbeugungsmuster wurden im Rahmen des Single-Scattering-Cluster-Modells (SSC) mit einem von mir erstellten Programm simuliert. Die dynamische Theorie der Elektronenbeugung ist zur Simulation der Elektronenchannellingmuster erforderlich. Ein von Zuo *et al.* [165] veröffentlichtes Programm zur Simulation von konvergenten Elektronenbeugungsmustern in der Transmissionselektronenmikroskopie (CBED) ist dazu im Rahmen dieser Arbeit von mir an das Problem der Elektronenchannellingmuster angepasst und erweitert worden. Das SSC-Modell nutzt eine Ortsraumdarstellung, während das ECP-Modell im reziproken Raum arbeitet.

Die Verwandtschaft von ECP und XPD wurde dadurch verdeutlicht, dass in geeigneten Fällen die Simulationsalgorithmen der einen Methode für die jeweils andere Methode genutzt werden können. Dazu wurde erstmals gezeigt, dass XPD-Beugungsmuster mit einem nur geringfügig modifizierten ECP-Blochwellenalgorithmus simuliert werden können. In umgekehrter Richtung wurde mittels eines angepassten SSC-Modells demonstriert, wie Kikuchibänder in einem Elektronenrückstreumuster erscheinen. Es wurde verdeutlicht, dass die jeweils beobachteten Effekte im Kristall an Punktquellen (XPD) bzw. Punktdetektoren (ECP) über das Reziprozitätsprinzip zueinander in Beziehung stehen. Die Äquivalenz der Modellierung im Ortsraum und im reziproken Raum wurde am Beispiel von 3C SiC durch Vergleich von Experiment und Theorie demonstriert. Als weitere Anwendung des Blochwellenmodells der XPD wurden Beugungsmuster von 2H Aluminiumnitrid berechnet, die eine dem Experiment entsprechende Abhängigkeit vom Emitteratom und der Oberflächenpolarität zeigten.

Photoelektronenbeugung und SSC-Modell Mittels des SSC-Modells der röntgenangeregten Photoelektronenbeugung konnte die Unterscheidbarkeit der SiC-Polytypen 2H, 3C, 4H und 6H erstmals durch Simulationen theoretisch begründet werden. Ebenso wurde die Polaritätsbestimmung von SiC-Proben durch Simulationen erklärt. Die Berücksichtigung der (3×3) und $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktionen von SiC-Oberflächen in den Simulationen ergibt keine gegenüber der Emission von ideal terminierten Oberflächen wesentlich veränderten Beugungsmuster, was zur Klärung dieses in der Literatur diskutierten Problems beiträgt. Für die Simulation und Interpretation der Beugungsmuster können also ideal terminierte Kristalle angenommen werden. Die

Polytypunterscheidung ist auch bei verschiedenen Stapelterminierungen der Oberfläche möglich, wie am Beispiel von 4H und 6H gezeigt wurde.

Der Einfluss der Mehrfachstreuung bei der XPD von 6H SiC in Richtung der Normalemission wurde mittels angepasster Cluster in einem Mehrfachstreuprogramm unter Berücksichtigung von bis zu sechsfacher Streuung simuliert. Dabei zeigte sich, dass schon die Zweifachstreuung eine deutlich bessere Übereinstimmung mit dem Experiment zeigt als das Einfachstreumodell. Vollständige Mehrfachstreusimulationen waren mit der vorhandenen Rechentechnik jedoch nicht möglich.

Channelling und Rückstreubeugung Die polytypabhängigen Effekte in Zonenachsen-Elektronenchannellingmustern konnten erstmals durch dynamische Simulationen reproduziert werden. Verantwortlich für die Polytypabhängigkeit sind reflektierende Ebenen, die nicht senkrecht zur Oberfläche liegen (HOLZ-Reflexe). Die Energieabhängigkeit solcher Effekte wurde am Beispiel von 3C SiC (111) gezeigt.

Es konnte gezeigt werden, wie Elektronenrückstreumuster, die in einem RHEED-Experiment einer Molekularstrahlepitaxieanlage beobachtet wurden, zur Unterscheidung der Polytypen 3C, 4H und 6H genutzt werden können. Dazu wurden die kinematisch vorhergesagten Positionen der polytypabhängigen Kikuchilinen mit experimentellen Mustern verglichen.

Tiefenempfindlichkeit Die Tiefenempfindlichkeit der Methoden wird wesentlich von der inelastischen mittleren freien Weglänge der verwendeten Elektronen bestimmt. Die XPD mit Photoelektronenenergien von etwas über 1keV besitzt eine Tiefenempfindlichkeit von etwa 2nm in SiC. Dies wurde durch emitteraufgelöste SSC-Simulationen sowie durch Mehrfachstreusimulationen an ausgewählten Atomketten unterstrichen. Die Tiefenempfindlichkeit der ECP hängt von der Energie der benutzten Elektronen ab und liegt bei 1 bis 6keV etwa im Bereich von 2nm bis 5nm. Wegen ihrer erhöhten Oberflächenempfindlichkeit sind elastische LEED- und RHEED-Beugungsmuster nur eingeschränkt zur Polytypunterscheidung geeignet.

Anwendungen Das Wachstum von 3C SiC auf einem 4H SiC-Substrat kann mittels XPD charakterisiert werden. Weiterhin konnte die Stufenstruktur und Stapelterminierung einer 6H SiC-Probe nach Hochtemperatur-Wasserstoffätzen mit XPD, quantitativem LEED und der Rastertunnelmikroskopie aufgeklärt werden. Dabei wurde eine großflächige S3-Terminierung von Stufen in der Höhe ganzer Elementarzellen gefunden. Es wurden die Photoelektronenbeugungsmuster von 2H SiC durch Vergleich mit 2H Aluminiumnitrid (AlN) vorhergesagt. Polytypabhängige Peakaufspaltungseffekte wurden am Beispiel von 3C SiC und 4H SiC durch Simulationen reproduziert und erklärt.

Insgesamt wurden die vielfältigen Möglichkeiten von Elektronenbeugungsmethoden bei der Analyse ultradünner SiC-Schichten demonstriert. Die erhaltenen Ergebnisse zur Polytypunterscheidung können im Prinzip vom Modellsystem SiC auch auf andere Materialien übertragen werden, die in mehreren Kristallmodifikationen existieren. Damit sind Möglichkeiten vorhanden, die Kristallstruktur ultradünner Schichten effektiv zu analysieren.

Zu dieser Arbeit gehörende Veröffentlichungen

- [1] B. Schröter, A. Winkelmann, A. Fissel, V. Lebedev, and W. Richter. Polytype and polarity of silicon carbide and aluminium nitride films growing by MBE: A nondestructive identification. *Materials Science Forum*, 353-356:227–230, 2001.
- [2] B. Schröter, A. Winkelmann, and W. Richter. X-ray photoelectron diffraction on SiC and AlN epitaxial films: Polytype structure and polarity. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 114:443–450, 2001.
- [3] A. Winkelmann. *Photoelektronenbeugung an Halbleiteroberflächen*. Diplomarbeit, Friedrich-Schiller-Universität, Jena, 2000.
- [4] A. Winkelmann, B. Schröter, and W. Richter. Simulations of x-ray photoelectron diffraction for polytype analysis. *Surface Science*, 515:126–134, 2002.
- [5] A. Winkelmann, B. Schröter, and W. Richter. Dynamical simulations of zone axis electron channelling patterns of cubic silicon carbide. *Ultramicroscopy*, accepted, 2003.
- [6] A. Winkelmann, B. Schröter, and W. Richter. Simulation of electron channelling patterns for *in-situ* polytype analysis of silicon carbide films. *Surface Science*, accepted, 2003.

Bücher

- [7] J. Feitknecht, *Springer Tracts in Modern Physics* 58 (Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1971).
- [8] S. Hüfner, *Photoelectron Spectroscopy* (Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1995).
- [9] L. Reimer, *Scanning Electron Microscopy - Physics of Image Formation and Microanalysis* (Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1998).
- [10] J. B. Pendry, *Low Energy Electron Diffraction* (Academic Press, London and New York, 1974).
- [11] W. Braun, *Applied RHEED : Reflection High-Energy Electron Diffraction During Crystal Growth* (Springer Verlag, Berlin, 1999).
- [12] A. Messiah, *Quantenmechanik*, 2nd ed. (de Gruyter, Berlin New York, 1991).
- [13] J. M. Cowley, *Diffraction Physics* (North-Holland, Amsterdam, 1995).
- [14] M. von Laue, *Materiewellen und ihre Interferenzen* (Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig, Leipzig, 1948).
- [15] A. Gonis and W. Butler, *Multiple Scattering in Solids* (Springer Verlag, New York Berlin Heidelberg, 2000).
- [16] J. C. H. Spence and J. M. Zuo, *Electron Microdiffraction* (Plenum Press, New York and London, 1992).
- [17] P. Hirsch *et al.*, *Electron Microscopy of Thin Crystals*, 2nd revised ed. (Krieger Publishing Company, Malabar, Florida, 1977).
- [18] M. A. van Hove and S. Y. Tong, *Surface Crystallography by LEED* (Springer Verlag, Heidelberg, 1979).
- [19] M. A. Van Hove, W. H. Weinberg, and C.-M. Chan, *Low Energy Electron Diffraction* (Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1986).
- [20] M.-C. Desjonquères and D. Spanjaard, *Concepts in Surface Physics, Springer Series in Surface Sciences* (Springer Verlag, Berlin Heidelberg, 1993).
- [21] D. Briggs and M. Seah, *Practical Surface Analysis* (J. Wiley & Sons, Chichester, 1990), Vol. 1: Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy.
- [22] *International Tables for Crystallography*, edited by International Union of Crystallography (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1983).
- [23] W. Kleber, H.-J. Bautsch, and J. Bohm, *Einführung in die Kristallographie* (Verlag Technik, Berlin, 1990).
- [24] *Materials for High-Temperature Semiconductor Devices* (National Academy Press, Washington D.C., 1995).
- [25] *Properties of Silicon Carbide*, edited by G. Harris (INSPEC, Washington D.C., 1995).

Weitere Literatur

- [26] B. Schröter *et al.*, Materials Science Forum **264-268**, 355 (1998).
- [27] A. Fissel, B. Schröter, U. Kaiser, and W. Richter, Applied Physics Letters **77**, 2418 (2000).
- [28] T. L. Daulton *et al.*, Science **296**, 1852 (2002).
- [29] C. Carter Jr. *et al.*, *European Conference on Silicon Carbide and Related Materials* (ECSCRM2000, Kloster Banz, 2000).
- [30] L. Ramsdell, American Mineralogist **32**, 64 (1947).
- [31] G. Hägg, Ark. Kem. Mineral. Geol. **163**, 1 (1943).
- [32] F. Bechstedt *et al.*, Physica Status Solidi (b) **202(1)**, 35 (1997).
- [33] A. Fissel, *About Heteropolytypic Structures: Molecular Beam Epitaxy, Characterization and Properties of Silicon Carbide* (Habilitationsschrift, Friedrich-Schiller-Universität, Jena, 2001).
- [34] A. Fissel *et al.*, Journal of Crystal Growth **154**, 72 (1995).
- [35] A. Fissel *et al.*, Materials Science & Engineering **B46**, 324 (1997).
- [36] A. Fissel *et al.*, Journal of Electronic Materials **28**, 206 (1999).
- [37] A. Fissel *et al.*, Thin Solid Films **380**, 89 (2000).
- [38] A. Fissel, Materials Science Forum **338-342**, 209 (2000).
- [39] A. Fissel, Thin Solid Films **212**, 438 (2000).
- [40] A. Fissel *et al.*, Applied Surface Science **184**, 37 (2001).
- [41] A. Fissel, Journal of Crystal Growth **227-228**, 805 (2001).
- [42] J. Furthmüller *et al.*, Journal of Electronic Materials **27**, 848 (1998).
- [43] U. Grossner *et al.*, Materials Science Forum **353-356**, 211 (2001).
- [44] F. Bechstedt *et al.*, Materials Science Forum **389-393**, 737 (2002).
- [45] I. Petrov *et al.*, Applied Physics Letters **60**, 2491 (1992).
- [46] R. Unwin, SPECS GmbH, SPECTRA for Windows, Berlin, 2000.
- [47] OriginLab Corporation, Northampton, USA, (<http://www.originlab.com>), 2000.
- [48] C. S. Fadley, Physica Scripta **T17**, 39 (1986).
- [49] C. S. Fadley, in *Synchrotron Radiation Research: Advances in Surface Science*, edited by R. Z. Bachrach (Plenum Press, New York, 1992), Vol. 2.
- [50] C. S. Fadley, Surface Science Reports **19**, 231 (1993).
- [51] C. Fadley, M. Van Hove, Z. Hussain, and A. Kaduwela, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **75**, 273 (1995).
- [52] K. Siegbahn, U. Gelius, H. Siegbahn, and E. Olson, Physica Scripta **1**, 272 (1970).
- [53] R. Baird, C.S.Fadley, and L.F.Wagner, Physical Review B **15**, 666 (1977).
- [54] P. J. Hardman *et al.*, Physical Review B **60**, 11700 (1999).
- [55] J. Osterwalder *et al.*, Surface Science **331-333**, 1002 (1995).
- [56] C. Pirri, U. Kafader, G. Gewinner, and P. Wetzel, Solid State Communications **89**, 313 (1994).
- [57] C. Scharfschwerdt *et al.*, Physical Review B **48**, 6919 (1993).
- [58] A. Chassé and P. Rennert, physica status solidi (b) **141**, K147 (1987).
- [59] T. Pillo, J. Hayoz, and P. Schwaller, Applied Physics Letters **75**, 1550 (1999).
- [60] M. Sami and G. Granozzi, Surface Science **415**, L1007 (1998).
- [61] M. Seelmann-Eggebert and H. Richter, Physical Review B **43**, 9578 (1991).

- [62] M. Seelmann-Eggebert, *Physical Review B* **48**, 11838 (1993).
- [63] A. Liebsch, *Physical Review Letters* **32**, 1203 (1974).
- [64] D. P. Woodruff, *Surface Science* **299/300**, 183 (1994).
- [65] Y. Chen *et al.*, *Physical Review B* **58**, 13121 (1998).
- [66] M. Sambi, G. Sangiovanni, G. Granozzi, and F. Parmigiani, *Physical Review B* **54**, 13464 (1996).
- [67] G. Rizzi, A. Magrin, and G. Granozzi, *Surface Science* **443**, 277 (1999).
- [68] M. Shimomura *et al.*, *Journal of Applied Physics* **85**, 3931 (1999).
- [69] E. Schaller, O. Küttel, P. Aebi, and L. Schlapbach, *Applied Physics Letters* **67**, 1533 (1995).
- [70] M. D. Negra, M. Sambi, and G. Granozzi, *Surface Science* **436**, 227 (1999).
- [71] R. Chelly, T. Angot, D. Bolmot, and J. Koulmann, *Applied Physics Letters* **67**, 1733 (1995).
- [72] J. Hayoz *et al.*, *Physical Review B* **59**, 15975 (1999).
- [73] M. Sambi and G. Granozzi, *Surface Science* **426**, 235 (1999).
- [74] M. Sambi and G. Granozzi, *Surface Science* **400**, 239 (1998).
- [75] S. Dreiner, C. Westphal, F. Sökeland, and H. Zacharias, *Applied Surface Science* **123/124**, 610 (1998).
- [76] C. Westphal, S. Dreiner, F. Sökeland, and H. Zacharias, *Surface Science* **396**, 87 (1998).
- [77] S. A. Chambers and V. A. Loeb, *Physical Review B* **47**, 9513 (1993).
- [78] M. Seelmann-Eggebert *et al.*, *Applied Physics Letters* **71**, 2635 (1997).
- [79] M. Sambi, *Surface Science* **319**, 149 (1994).
- [80] V. Lebedev, B. Schröter, G. Kipshidze, and W. Richter, *Journal of Crystal Growth* **207**, 266 (1999).
- [81] J. Osterwalder *et al.*, *Progress in Surface Science* **64**, 65 (2000).
- [82] P. Aebi *et al.*, *Surface Science* **402-404**, 614 (1998).
- [83] J. Kröger, T. Greber, and J. Osterwalder, *Surface Science* **459**, 173 (2000).
- [84] A. Fanel, *Physical Review B* **54**, 17962 (1996).
- [85] G. Herman *et al.*, *Physical Review Letters* **68**, 650 (1992).
- [86] T. Tran *et al.*, *Physical Review B* **45**, 12106 (1992).
- [87] C. Westphal, S. Dreiner, M. Schürmann, and H. Zacharias, *Surface Science* **462**, 103 (2000).
- [88] S. Thevuthasan *et al.*, *Physical Review Letters* **70**, 595 (1993).
- [89] Point Electronic, *WinDISS* (www.pointelectronic.de, Halle (Saale), 2000).
- [90] O. C. Wells, *Scanning* **21**, 368 (1999).
- [91] K. Z. Baba-Kishi, *Journal of Materials Science* **37**, 1715 (2002).
- [92] J. R. Michael and J. A. Eades, *Ultramicroscopy* **81**, 67 (2000).
- [93] K. H. Young *et al.*, *Thin Solid Films* **206**, 369 (1991).
- [94] S. Geier *et al.*, *Applied Physics Letters* **65**, 1781 (1994).
- [95] S. Mo *et al.*, *Materials Science & Engineering B* **56**, 37 (1998).
- [96] F. Sweeney *et al.*, *physica status solidi (b)* **228**, 533 (2001).
- [97] C. Trager-Cowan *et al.*, *Journal of Microscopy* **205**, 226 (2002).
- [98] T. F. Page, C. J. Mc Hargue, and C. W. White, *Journal of Microscopy* **163**, 245 (1991).
- [99] A. J. Wilkinson and P. B. Hirsch, *Micron* **28**, 279 (1997).
- [100] K. Heinz, U. Starke, J. Bernhardt, and J. Schardt, *Applied Surface Science* **162-163**, 9 (2000).
- [101] J. A. Dillon, R. E. Schlier, and H. E. Farnsworth, *Journal of Applied Physics* **30**, 675 (1959).

- [102] A. J. van Bommel, J. E. Crombeen, and A. van Tooren, *Surface Science* **48**, 463 (1975).
- [103] F. Bozso *et al.*, *Journal of Vacuum Science and Technology* **2**, 1271 (1984).
- [104] S. Adachi, M. Mohri, and T. Yamashina, *Surface Science* **161**, 479 (1985).
- [105] L. Muehlhoff, W. J. Choyke, M. J. Bozack, and J. T. Yates, Jr., *Journal of Applied Physics* **60**, 2842 (1986).
- [106] R. Kaplan and T. M. Parrill, *Surface Science* **165**, L45 (1986).
- [107] R. Kaplan, *Surface Science* **215**, 111 (1989).
- [108] S. Nakanishi *et al.*, *Applied Surface Science* **41-42**, 44 (1989).
- [109] V. M. Bermudez, *Applied Surface Science* **84**, 45 (1995).
- [110] H. Nienhaus, T. U. Kampen, and W. Mönch, *Surface Science* **324**, L328 (1995).
- [111] L. I. Johansson, F. Owman, and P. Martensson, *Surface Science* **360**, L483 (1996).
- [112] L. I. Johansson *et al.*, *Physical Review* **B53**, 13803 (1996).
- [113] L. I. Johansson, F. Owman, and P. Martensson, *Physical Review* **B53**, 13793 (1996).
- [114] L. I. Johansson, F. Owman, and P. Martensson, *Surface Science* **360**, 478 (1996).
- [115] U. Starke, *physica status solidi (b)* **202**, 475 (1997).
- [116] F. S. Tautz, S. Sloboshanin, U. Starke, and J. A. Schaefer, *Surface Science* **470**, L25 (2000).
- [117] F. Amy *et al.*, *Physical Review Letters* **86**, 4342 (2001).
- [118] F. Amy, P. Soukiassian, Y. K. Hwu, and C. Brylinski, *Physical Review* **65**, 165323 (2002).
- [119] C. S. Chang, I. S. T. Tsong, Y. C. Wang, and R. F. Davis, *Surface Science* **256**, 354 (1991).
- [120] M. H. Tsai, C. S. Chang, J. D. Dow, and I. S. T. Tsong, *Physical Review* **B45**, 1327 (1992).
- [121] M. A. Kulakov, P. Heuell, V. F. Tsvetkov, and B. Bullemer, *Surface Science* **315**, 248 (1994).
- [122] Y. Marumoto *et al.*, *Japanese Journal of Applied Physics* **34**, 3351 (1995).
- [123] L. Li *et al.*, *Surface Science* **385**, 60 (1997).
- [124] K. Reuter *et al.*, *Physical Review* **58**, 10806 (1998).
- [125] U. Starke *et al.*, *Physical Review Letters* **80**, 758 (1998).
- [126] J. Schardt, J. Bernhardt, U. Starke, and K. Heinz, *Physical Review B* **62**, 10335 (2000).
- [127] U. Starke *et al.*, *Physical Review Letters* **82**, 2107 (1999).
- [128] M. Hollering *et al.*, *Physical Review* **B58**, 4992 (1998).
- [129] A. Seubert *et al.*, *Surface Science* **454-456**, 45 (2000).
- [130] J. Schardt *et al.*, *Surface Science* **337**, 232 (1995).
- [131] U. Starke, J. Schardt, and M. Franke, *Applied Physics A Materials Science & Processing* **65**, 587 (1997).
- [132] J. Schardt *et al.*, *Materials Science Forum* **264-268**, 343 (1998).
- [133] U. Starke, J. Bernhardt, J. Schardt, and K. Heinz, *Surface Review and Letters* **6**, 1129 (1999).
- [134] J. Bernhardt, J. Schardt, U. Starke, and K. Heinz, *Applied Physics Letters* **74**, 1084 (1999).
- [135] N. Sieber *et al.*, *Applied Physics Letters* **78**, 1216 (2001).
- [136] N. Sieber *et al.*, *Applied Physics Letters* **80**, 4726 (2002).
- [137] U. Starke, *Materials Science Forum* **353-356**, 205 (2001).
- [138] L. Simon, J. Bischoff, and L. Kubler, *Physical Review B* **60**, 11653 (1999).
- [139] S. W. King, C. Ronning, R. F. Davis, and R. J. Nemanich, *Journal of Applied Physics* **84**, 6042 (1998).
- [140] S. Juillaguet *et al.*, *Surface Science* **339**, 363 (1995).
- [141] M. Diani, J. Bischoff, L. Kubler, and D. Bolmont, *Applied Surface Science* **68**, 575 (1993).

- [142] J. Bischoff, D. Dentel, and L. Kubler, *Surface Science* **415**, 392 (1998).
- [143] M. Shimomura *et al.*, *Surface Science* **438**, 237 (1999).
- [144] I. Matko *et al.*, *Materials Science Forum* **389-393**, 315 (2002).
- [145] M. Diani *et al.*, *Journal of Crystal Growth* **235**, 95 (2002).
- [146] A. Barbieri and M. Van Hove, Private Communication (<http://electron.lbl.gov/leedpack/>).
- [147] M. Sagurton *et al.*, *Physical Review B* **33**, 2207 (1986).
- [148] M. Gajdardziska-Josifovska and J. M. Cowley, *Acta Crystallographica* **A47**, 74 (1991).
- [149] D. A. Bilhorn, L. L. Folder, R. M. Thaler, and W. Tobocman, *Journal of Mathematical Physics* **5**, 435 (1964).
- [150] P. Rennert and A. Chassé, *Experimentelle Technik der Physik* **35**, 27 (1987).
- [151] J. J. Rehr and R. C. Albers, *Reviews of Modern Physics* **72**, 621 (2000).
- [152] Y. Chen and M. Van Hove, (<http://electron.lbl.gov/mscdpack/>).
- [153] V. Fritzsche, *Surface Science* **213**, 648 (1989).
- [154] V. Fritzsche and P. Rennert, *physica status solidi (b)* **135**, 49 (1986).
- [155] V. Fritzsche, *physica status solidi (b)* **147**, 485 (1988).
- [156] P. Rennert and N. Van Hung, *physica status solidi (b)* **148**, 49 (1988).
- [157] H. A. Bethe, *Annalen der Physik (Leipzig)* **87**, 55 (1928).
- [158] R. M. Stern, J. J. Perry, and D. S. Boudreaux, *Reviews of Modern Physics* **41**, 275 (1969).
- [159] W. Qian, J. Spence, and J. Zuo, *Acta Crystallographica* **A44**, 436 (1993).
- [160] J. B. Pendry, *Surface Science* **299/300**, 375 (1994).
- [161] P. J. Rous *et al.*, *Physical Review Letters* **57**, 2951 (1986).
- [162] M. A. Van Hove *et al.*, *Surface Science Reports* **19**, 191 (1993).
- [163] S. Tanuma, C. Powell, and D. Penn, *Surface Science* **192**, L849 (1987).
- [164] S. Kono, S. M. Goldberg, N. F. T. Hall, and C. S. Fadley, *Physical Review B* **22**, 6085 (1980).
- [165] J. M. Zuo, K. Gjønnes, and J. C. H. Spence, *Journal of Electron Microscopy Technique* **12**, 29 (1989).
- [166] L. J. Allen and C. J. Rossouw, *Physical Review B* **39**, 8313 (1989).
- [167] L. J. Allen and C. J. Rossouw, *Physical Review B* **42**, 11644 (1990).
- [168] L. J. Allen and C. J. Rossouw, *Physical Review B* **47**, 2446 (1993).
- [169] C. J. Rossouw, P. R. Miller, T. W. Josefsson, and L. J. Allen, *Philosophical Magazine A* **70**, 985 (1994).
- [170] K. Marthinsen and R. Høier, *Acta Crystallographica* **A44**, 700 (1988).
- [171] L. Reimer, H. G. Badde, H. Seidel, and W. Bühring, *Zeitschrift für angewandte Physik* **31**, 145 (1971).
- [172] C. Hall and P. Hirsch, *Proceedings of the Royal Society London* **A286**, 158 (1965).
- [173] J. P. Spencer, C. J. Humphreys, and P. B. Hirsch, *Philosophical Magazine* **26**, 193 (1972).
- [174] S. L. Dudarev, P. Rez, and M. J. Whelan, *Physical Review* **B51**, 3397 (1995).
- [175] J. P. Spencer and C. J. Humphreys, *Philosophical Magazine* **A42**, 433 (1980).
- [176] T. Yamamoto, M. Mori, and Y. Ishida, *Philosophical Magazine* **A38**, 439 (1978).
- [177] R. Sandström, J. P. Spencer, and C. J. Humphreys, *Journal of Physics D: Applied Physics* **7**, 1030 (1974).
- [178] K. Marthinsen and R. Høier, *Acta Crystallographica* **A42**, 484 (1986).
- [179] P. A. Doyle and P. S. Turner, *Acta Crystallographica* **A24**, 390 (1968).
- [180] H. X. Gao and L.-M. Peng, *Acta Crystallographica* **A55**, 926 (1999).
- [181] L.-M. Peng, *Micron* **30**, 625 (1999).

- [182] M. J. Whelan, *Applied Physics* **36**, 2103 (1965).
- [183] C. Humphreys and P. Hirsch, *Philosophical Magazine* **18**, 115 (1968).
- [184] D. M. Bird and Q. A. King, *Acta Crystallographica* **A46**, 202 (1990).
- [185] A. Weickenmeier and H. Kohl, *Acta Crystallographica* **A47**, 590 (1991).
- [186] C. J. Rossouw and L. A. Bursill, *Acta Crystallographica* **A41**, 320 (1985).
- [187] C. J. Humphreys, *Reports on Progress in Physics* **42**, 1825 (1979).
- [188] R. E. Dewames, W. F. Hall, and G. W. Lehman, *Physical Review* **148**, 181 (1966).
- [189] R. E. DeWames and W. F. Hall, *Acta Crystallographica* **A24**, 206 (1968).
- [190] S. M. Goldberg *et al.*, *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **21**, 1 (1980).
- [191] S. A. Chambers, I. M. Vitomirov, and J. H. Weaver, *Physical Review* **B36**, 3007 (1987).
- [192] Y. Gao and J. Cao, *Physical Review B* **43**, 9692 (1991).
- [193] Y. Gao and K. T. Park, *Physical Review B* **46**, 1743 (1992).
- [194] P. Schattschneider, B. Jouffrey, and M. Nelhiebel, *Physical Review B* **54**, 3861 (1996).
- [195] J. Osterwalder *et al.*, *Physical Review* **B35**, 9859 (1987).
- [196] O. M. Küttel *et al.*, *Surface Science* **312**, 131 (1994).
- [197] Y. Ichinohe, H. Ishii, M. Owari, and Y. Nihei, *Japanese Journal of Applied Physics* **35**, L587 (1996).
- [198] S. Omori, H. Ishii, and Y. Nihei, *Japanese Journal of Applied Physics* **36**, L1689 (1997).
- [199] S. Omori and Y. Nihei, *Japanese Journal of Applied Physics* **37**, 4076 (1998).
- [200] U. Bardi *et al.*, *Surface Science* **394**, L150 (1997).
- [201] J. F. Hart and J. L. Beeby, *Surface Science* **410**, L757 (1998).
- [202] J. F. Hart and J. L. Beeby, *Surface Science* **424**, 94 (1999).
- [203] M. D. Pauli and D. K. Saldin, *Physical Review B* **64**, 075411 (2001).
- [204] H. C. Poon, M. D. Pauli, A. Wander, and D. K. Saldin, *Physical Review* **B65**, 134115 (2002).
- [205] S. Evans, *Journal of Physics: Condensed Matter* **9**, 1967 (1997).
- [206] R. Fasel *et al.*, *Physical Review B* **50**, 14516 (1994).
- [207] S. Scalese *et al.*, *Surface Science* **395**, 120 (1998).
- [208] K.-M. Schindler *et al.*, *Physical Review* **46**, 4836 (1992).
- [209] M. Van Hove, S. Tong, and M. Elconin, *Surface Science* **64**, 85 (1977).
- [210] D. K. Saldin, G. R. Harp, and X. Chen, *Physical Review B* **48**, 8234 (1993).
- [211] P. Baumgärtel *et al.*, *Physical Review* **59**, 13014 (1999).
- [212] M. Muntwiler *et al.*, *Surface Science* **472**, 125 (2001).
- [213] L. Wang *et al.*, *Physical Review* **B44**, 1292 (1991).
- [214] P. Hofmann *et al.*, *Surface Science* **337**, 169 (1995).
- [215] D. K. Saldin, G. R. Harp, and B. P. Tonner, *Physical Review B* **45**, 9629 (1992).
- [216] J. B. Pendry, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **13**, 937 (1980).
- [217] J. P. Morniroli, *Electron Diffraction* (Université des Sciences et Technologies, Lille, 2000).
- [218] T. Yamamoto, *physica status solidi (a)* **43**, K53 (1977).
- [219] T. Yamamoto, *physica status solidi (a)* **44**, 137 (1977).
- [220] T. Yamamoto, *physica status solidi (a)* **44**, 467 (1977).
- [221] W. F. Egelhoff, *Physical Review Letters* **59**, 559 (1987).

- [222] G. Herman and C.S.Fadley, Physical Review B **43**, 6792 (1991).
- [223] R. R. E. Puppín, C. Carbone, Physical Review B **46**, 13215 (1992).
- [224] W. O'Brien, J. Zhang, and B.P.Tonner, Physical Review B **48**, 10934 (1993).
- [225] S. Valeri, A. Di Bona, and G. Gazzadi, Physical Review B **50**, 14617 (1994).
- [226] M. L. Xu, J. Barton, and M. Van Hove, Physical Review B **39**, 8275 (1989).
- [227] H. Aebischer *et al.*, Surface Science **239**, 261 (1990).
- [228] V. V. Makarov and N. N. Petrov, Soviet Physics: Solid State **30**, 2133 (1988).
- [229] F. Scharmann and J. Pezoldt, Materials Science Forum **389-393**, 463 (2002).
- [230] J. E. Northrup and J. Neugebauer, Physical Review **B52**, R17001 (1995).
- [231] A. Zimmer, *Elektronenstreuung an Einkristallen zur Bestimmung der atomaren Struktur dünner Oberflächenschichten* (Diplomarbeit, Friedrich-Schiller-Universität, Jena, 2003).
- [232] B. I. Levchuk *et al.*, Physics, Chemistry and Mechanics of Surfaces **4**, 2744 (1987).
- [233] L. A. Zhukova *et al.*, Kristallografiya **21**, 807 (1975).
- [234] L. A. Zhukova and B. B. Zvyagin, Kristallografiya **21**, 1193 (1976).
- [235] P. Schieffer *et al.*, Surface Science **482-485**, 593 (2001).
- [236] T. Kimoto, A. Itoh, and H. Matsunami, Journal of Applied Physics **81**, 3494 (1997).
- [237] N. Ohtani *et al.*, Journal of Crystal Growth **210**, 613 (2000).
- [238] M. Sabisch, P. Krüger, and J. Pollmann, Physical Review **B55**, 10561 (1997).
- [239] A. Mosser, C. Burggraf, S. Goldsztaub, and Y. H. Ohtsuki, Surface Science **54**, 580 (1976).
- [240] M. A. Vicente Alvarez and G. Zampieri, Physical Review **B58**, 16378 (1998).
- [241] M. A. Vicente Alvarez *et al.*, Physical Review **B60**, 4952 (1999).

A Zusammenstellung wichtiger Daten

Wichtige Daten von SiC und AlN im Vergleich zu anderen bekannten Materialien sind in Tabelle A.1 zusammengestellt. Zu beachten ist dabei, dass bei der für SiC angegebenen „Schmelztemperatur“ das Material sublimiert.

Eigenschaft		Si	GaAs	3C-SiC	4H-SiC	6H-SiC	AlN	Diamant
Gitterkonstante	kub $a_0[\text{\AA}]$	5.403	5.65	4.3596				3.567
	hex $a_0[\text{\AA}]$			3.0827	3.073	3.0806	3.11	
	$c_0[\text{\AA}]$			7.5512	10.053	15.173	4.98	
Dichte	$[g/cm^3]$	2.328	5.32	3.210	3.210	3.211	3.255	3.515
Schmelztemperatur	$[^\circ\text{C}]$	1420	1238	1800	1800	1800	3000	4000
				(sublimiert)	(sublimiert)	(sublimiert)		
Bandgap	$[\text{eV}]$	1.1	1.43	2.39	3.26	3.02	6.2	5.45
Durchbruchfeld	$[10^5 \text{ V/cm}]$	6	6	20	30	32	>50	100
Wärmeleitung	$[\text{W/cmK}]$	1.5	0.46	5	4.9	4.9	3.0	20
Brechungsindex	467nm	3.5	3.4	2.7104	2.7186	2.7074	3.32	2.42

Tabelle A.1: Wichtige Materialeigenschaften einiger Halbleiter im Vergleich zu SiC [24, 25]

B Software

In diesem Anhang folgen kurze Beschreibungen der von mir erstellten Programme zur Simulation und Auswertung von Photoelektronenbeugungsmustern und Elektronenchannellingmustern.

B.1 ESPANA

Zur Auswertung der gemessenen Photoelektronenspektren dient das Paket ESPANA, welches als Sammlung von Makros für das kommerzielle Programm MICROCAL ORIGIN erstellt wurde. Damit ist der Import und die graphische Darstellung von Photoelektronenspektren des SPECTRA-Programms möglich, das zur Messung der Spektren und Steuerung der Analyseanlage dient. Es kann die Auswertung von Polar- und Azimutscans durch die automatische Bestimmung von Peakhöhen und Intensitäten über linearen oder konstanten Untergründen erfolgen. ESPANA erzeugt Dateien, die direkt in DAMAT (Abschnitt B.3) importierbar und dort als zweidimensionale Muster darstellbar sind.

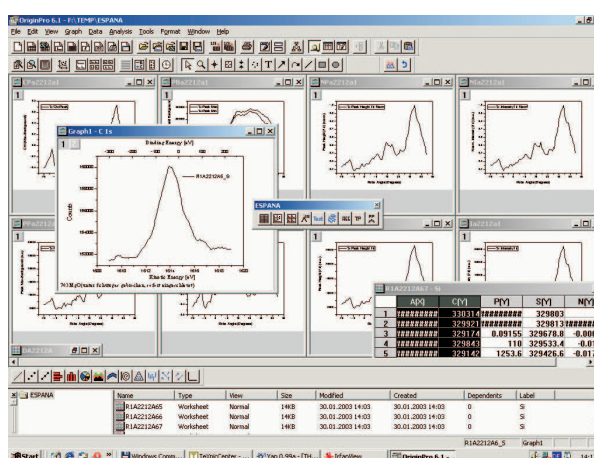


Abb. B.1: Bildschirmansicht von MICROCAL ORIGIN mit ESPANA.

B.2 CALCMAT

Das Programm CALCMAT führt Einfachstreurechnungen für Polarplots und vollständige Beugungsmuster im Rahmen des SSC-Modells durch. Dabei kann zwischen der Streuung ebener Wellen und der Kugelwellenstreuung gewählt werden. Außerdem ist damit die Simulation der Auger-Elektronenbeugung, des inelastischen LEED-Untergrundes und von LEED-Mustern im Rahmen der kinematischen Theorie möglich.

Grundlage des Programms sind Eingabefiles, in denen die zu simulierende Struktur und die weiteren Parameter definiert werden. Die Tanuma-Powell-Penn Formel kann im Programm zur Berechnung der IMFP benutzt werden. Für die Darstellung vollständiger Beugungsmuster erzeugt das Programm Dateien, die direkt in DAMAT (Abschnitt B.3) importierbar und dort als zweidimensionale Muster darstellbar sind.

`calcmat` wird von der Kommandozeile unter Windows folgendermaßen aufgerufen:

`calcmat parameterfilename`

Dabei muss der entsprechende Dateiname eingesetzt werden. Es existieren kommentierte Beispieldateien, die die Modellierung verschiedener Oberflächen demonstrieren.

B.3 DAMAT

Das Programm DAMAT dient zur Darstellung und Bearbeitung von vollständigen Photoelektronenbeugungsmustern, welche experimentell gemessen oder simuliert wurden. Es arbeitet unter

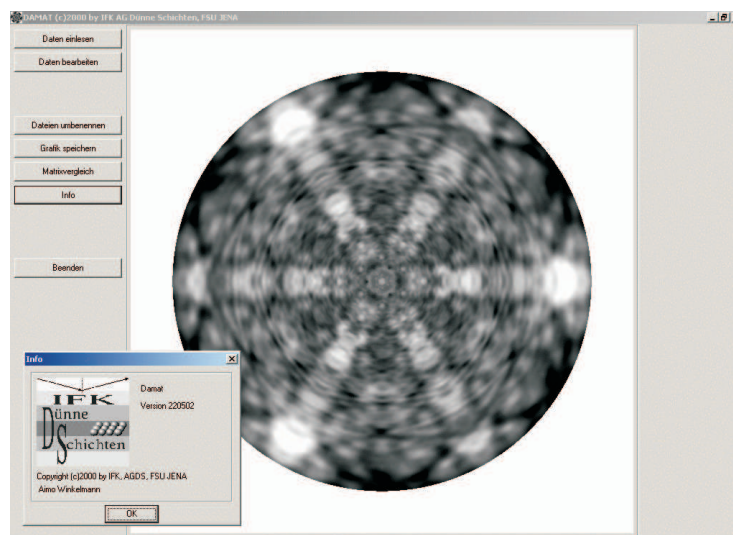


Abb. B.2: Bildschirmansicht von DAMAT.

einer Windows-Oberfläche. Die einzulesenden Daten müssen in einzelnen, fortlaufend nummerierten Dateien vorliegen, die jeweils die Daten für Polarscans bei einem festen Azimut enthalten. Die dargestellten Muster können als BMP-Dateien abgespeichert und in anderen Programmen weiterverwendet werden. Im Programm ist es möglich, den Kontrast und die Helligkeit, die Skalierung und die Glättung der Beugungsmuster anzupassen. Eine Korrektur experimenteller Verschiebungen der Polarscans und Intensitätsschwankungen ist ebenfalls möglich.

B.4 ECP

Das Programm ECP ist eine an das Problem der Elektronenchannellingmuster angepasste Version des von Zuo *et al.* veröffentlichten FORTRAN-Programms TCBED [16, 165]. Dieses Programm wird eigentlich zur Simulation von konvergenten Elektronenbeugungsmustern in der Transmissionselektronenmikroskopie verwendet, beinhaltet aber das auch für die Channellingmuster benutzte Blochwellenmodell. Die Anregungskoeffizienten der Blochwellen werden vom ursprünglichen TCBED geliefert und dann in den entsprechenden Formeln der hinzugefügten Channelling-Modelle weiterverwendet. Insbesondere wurden die „Forward-Backward-Approximation“ (Formel 4.51) und das Modell nach Rossouw *et al.* (Formel 4.48) in das Programm inkorporiert.

Als Parameter benötigt das Programm die atomare Zusammensetzung und Struktur der Einheitszelle, eine Liste der betrachteten Gitterebenen, sowie Angaben über den einfallenden Elektronenstrahl. Zur Simulation der Photoelektronenbeugung mit dem Blochwellenmodell ist noch die Angabe der emittierenden Atomsorte nötig.

Lebenslauf

Name: Aimo Winkelmann
Geburtsdatum: 24.03.1973
Geburtsort: Waren(Müritz)
Nationalität: deutsch
Familienstand: ledig
Wohnort: Dietrichweg 24, 07749 Jena

Ausbildung

09/1987 - 06/1992 Besuch der Spezialklasse für Englisch, Russisch und Französisch,
Erweiterte Oberschule „Friedrich Engels“, Neubrandenburg
08/1990 - 07/1991 Austauschschüler in Abilene, Texas, USA
06/1992 Abitur, Note: 1,2
04/1996 - 12/2000 Physikstudium, Friedrich-Schiller-Universität Jena,
Diplomnote: „mit Auszeichnung“ (1,0)

Wissenschaftlicher Werdegang

12/2000 Diplomarbeit über „Photoelektronenbeugung an Halbleiteroberflächen“,
Schwerpunkt: Simulation und Auswertung von Photoelektronenbeugungsmu-
stern verschiedener Siliziumkarbid-Polytypen und von Aluminiumnitrid mit-
tels selbst erstellter Software
12/2001 Fakultätspreis der Physikalisch-Astronomischen Fakultät der Friedrich-
Schiller-Universität Jena für die beste Diplomarbeit
seit 1/2001 Doktorand am Institut für Festkörperphysik der Friedrich-Schiller-Universität
Jena

Aimo Winkelmann

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Bei der Auswahl und Interpretation folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen:

1. Prof. Wolfgang Richter war der betreuende Hochschullehrer dieser Arbeit. Mit ihm wurde der Inhalt der Arbeit diskutiert.
2. Dr. Bernd Schröter war für die nähere Betreuung der Arbeit zuständig und stellte einen Teil der experimentellen Daten zur Auswertung zur Verfügung.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Aimo Winkelmann

Danksagung

Herrn Prof. Wolfgang Richter danke ich für die Möglichkeit zur Bearbeitung dieses interessanten Themas und für die Betreuung seit meiner Diplomarbeit.

Herrn Dr. Bernd Schröter möchte ich dafür danken, dass er meine Arbeit unterstützt und begleitet hat. Er brachte mir viele Gesichtspunkte der Oberflächenphysik näher und verdeutlichte mir besonders die praktischen Probleme dabei. Dabei ließ er mir auch den Freiraum, meine eigenen Wege zu verfolgen. Ohne ihn hätte die Arbeit in der vorliegenden Form nicht entstehen können.

Frau Helga Rudolph danke ich für die Präparation der Proben und die Durchführung von vielen Messungen, die in dieser Arbeit ausgewertet wurden.

Ich möchte mich weiterhin bei der gesamten Arbeitsgruppe „Physik Dünner Schichten“ für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die gute Zusammenarbeit bedanken.

Meinen Eltern und Großeltern möchte ich dafür danken, dass sie mich die ganze Zeit auf meinem Weg unterstützt haben.

Aimo Winkelmann